

Best Available Copy

PCT/JP 2004/011727

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

10. 8. 2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 3 年 8 月 1 1 日

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 2 9 1 2 0 7
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 2 9 1 2 0 7]

出 願 人
Applicant(s): ノードソン コーポレーション

REC'D 24 SEP 2004

WIPO

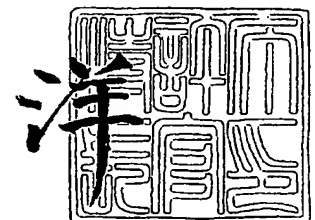
PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 9 月 9 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 0 8 1 1 2 2

【書類名】 特許願
【整理番号】 AX4983X0
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 H01M 8/00
H01M 4/00
【発明者】
【住所又は居所】 東京都品川区勝島 1 丁目 5 番 2 1 号 東神ビル 8 階 ノードソン
株式会社内
【氏名】 松永 正文
【特許出願人】
【識別番号】 391019120
【氏名又は名称】 ノードソン コーポレーション
【代理人】
【識別番号】 100064447
【弁理士】
【氏名又は名称】 岡部 正夫
【選任した代理人】
【識別番号】 100085176
【弁理士】
【氏名又は名称】 加藤 伸晃
【選任した代理人】
【識別番号】 100106703
【弁理士】
【氏名又は名称】 産形 和央
【選任した代理人】
【識別番号】 100096943
【弁理士】
【氏名又は名称】 臼井 伸一
【選任した代理人】
【識別番号】 100091889
【弁理士】
【氏名又は名称】 藤野 育男
【選任した代理人】
【識別番号】 100101498
【弁理士】
【氏名又は名称】 越智 隆夫
【選任した代理人】
【識別番号】 100096688
【弁理士】
【氏名又は名称】 本宮 照久
【選任した代理人】
【識別番号】 100102808
【弁理士】
【氏名又は名称】 高梨 憲通
【選任した代理人】
【識別番号】 100104352
【弁理士】
【氏名又は名称】 朝日 伸光

【選任した代理人】
 【識別番号】 100107401
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 高橋 誠一郎
【選任した代理人】
 【識別番号】 100106183
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 吉澤 弘司
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 013284
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9707460

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

電極を付与する前の燃料電池用電解質膜であって、前記電解質膜の少なくとも片面に所望する電極形状にくりぬかれた穴を有するマスキング部材を積層したことを特徴とする燃料電池用電解質膜。

【請求項 2】

前記電解質膜の両面にはほぼ相似形の所望する電極形状にくりぬかれた穴を有するマスキング部材を積層したことを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 3】

前記マスキング部材は、前記電解質膜に自着又は微粘着剤を介して貼り付けられていることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 4】

前記電解質膜及び／又はマスキング部材がウェブであって、前記電解質膜がロールストックになっていることを特徴とする請求項 1 乃至 3 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 5】

前記電解質膜が枚葉シートに断裁されていることを特徴とする請求項 1 乃至 3 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 6】

少なくとも一つのマスキング部材上にガスバリア性のシート又はウェブが積層されていることを特徴とする請求項 1 乃至 5 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 7】

マスキング部材の厚みは、後工程で形成する電極の厚みとほぼ同じかそれより厚いことを特徴とする請求項 1 乃至 6 の燃料電池用電解質膜。

【請求項 8】

前記電解質膜は、気体遮断性包装材で包まれていることを特徴とする請求項 1 乃至 7 の燃料電池用電解質膜。

【請求項 9】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーであって、

請求項 1 乃至 8 に記載の燃料電池用電解質膜のマスキング部材の穴を通して燃料電池用電解質膜に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填し、マスキング部材を剥がすことにより製造された燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー。

【請求項 10】

燃料電池用電解質膜に塗布又は充填された電極インク又は／及び粉末状の電極材料は、燃料電池用電解質膜に固着されていることを特徴とする請求項 9 に記載の燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー。

【請求項 11】

前記電極インク又は／及び粉末状の電極材料は、乾燥又は加熱又は／及び圧着により燃料電池用電解質膜に固着されていることを特徴とする請求項 11 に記載の燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー。

【請求項 12】

燃料電池であって、請求項 9 乃至 11 に記載の燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを使用した燃料電池。

【請求項 13】

電解質膜複合体であって、

電解質膜と、

複数の穴が設けられたマスキング部材とからなり、

前記マスキング部材が前記電解質膜の一方の面に引き剥がし可能に貼り付けられていることを特徴とする電解質膜複合体。

【請求項 14】

前記穴は、燃料電池の燃料電極の形状に形成されていることを特徴とする請求項 13 に

記載の電解質膜複合体。

【請求項 15】

さらに、前記電解質膜の他方の面に引き剥がし可能に貼り付けられたマスキング部材を含むことを特徴とする請求項 13 又は 14 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 16】

さらに、ガスバリア性シートを含むことを特徴とする請求項 13 乃至 15 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 17】

前記ガスバリア性シートは、前記マスキング部材に引き剥がし可能に貼り付けられていることを特徴とする請求項 16 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 18】

前記ガスバリア性シートは、前記電解質膜に引き剥がし可能に貼り付けられていることを特徴とする請求項 16 又は 17 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 19】

前記マスキング部材は、自己粘着性材料でつくられていることを特徴とする請求項 13 乃至 18 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 20】

前記ガスバリア性シートは、自己粘着性材料でつくられていることを特徴とする請求項 16 乃至 19 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 21】

前記電解質膜複合体は、巻かれてロールストックにされていることを特徴とする請求項 13 乃至 20 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 22】

前記電解質膜複合体は、断裁されて枚葉シートにされて少なくとも一つの穴が設けられていることを特徴とする請求項 13 乃至 20 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 23】

前記電解質膜複合体は、気体遮断性包装材で包まれていることを特徴とする請求項 13 乃至 22 に記載の電解質膜複合体。

【請求項 24】

電解質膜とマスキング部材とからなる電解質膜複合体を製造する方法であって、マスキング部材に所望の形状の穴を開ける工程と、その後、マスキング部材と電解質膜を貼り合わせる工程とからなることを特徴とする方法。

【請求項 25】

電解質膜とマスキング部材とからなる電解質膜複合体を製造する方法であって、マスキング部材と電解質膜を貼り合わせる工程と、その後、マスキング部材に所望の形状の穴を開ける工程とからなることを特徴とする方法。

【請求項 26】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法であって、電解質膜と複数の穴が設けられたマスキング部材とからなる電解質膜複合体のロールストックを回転可能に設置する工程と、ロールストックから電解質膜複合体を引き出す工程と、電解質膜複合体を搬送しつつマスキング部材の複数の穴を通して該電解質膜に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填する工程と、マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなることを特徴とする方法。

【請求項 27】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法であって、電解質膜と、複数の穴が設けられたマスキング部材と、ガスバリア性シートとからなる電解質膜複合体のロールストックを回転可能に設置する工程と、

ロールストックから電解質膜複合体を引き出す工程と、
ガスバリア性シートを剥がす工程と、
電解質膜複合体を搬送しつつマスキング部材の複数の穴を通して該電解質膜に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填する工程と、
マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなることを特徴とする方法。

【請求項 28】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法であって、
電解質膜と、該電解質膜の第一面に貼り付けられ、複数の穴が設けられた第一マスキング部材と、該電解質膜の第二面に貼り付けられ、複数の穴が設けられた第二マスキング部材とからなる電解質膜複合体のロールストックを回転可能に設置する工程と、
ロールストックから電解質膜複合体を引き出す工程と、
電解質膜複合体を搬送しつつ第一マスキング部材の複数の穴を通して電解質膜の第一面に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填する工程と、
第一マスキング部材を電解質膜から剥がす工程と、
電解質膜及び第二マスキング部材を反転させる工程と、
電解質膜及び第二マスキング部材を搬送しつつ第二マスキング部材の複数の穴を通して電解質膜の第二面に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填する工程と、
第二マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなることを特徴とする方法。

【請求項 29】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法であって、
電解質膜と少なくとも一つの穴が設けられたマスキング部材とからなる電解質膜複合体の枚葉シートを設置する工程と、
マスキング部材の少なくとも一つの穴を通して該電解質膜に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填する工程と、
マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなることを特徴とする方法。

【請求項 30】

電極インク又は／及び粉末状の電極材料を該電解質膜に固着する工程をさらに含むことを特徴とする請求項 26 乃至 29 に記載の方法。

【請求項 31】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法であって、
電解質膜と、該電解質膜の第一面に貼り付けられ、複数の穴が設けられた第一マスキング部材と、該電解質膜の第二面に貼り付けられ、複数の穴が設けられた第二マスキング部材とからなる電解質膜複合体を搬送しつつ該第一マスキング部材及び該第二マスキング部材の穴を通して粉末状の電極材料を充填又は／及び塗布する工程を含むことを特徴とする方法。

【請求項 32】

該第一マスキング部材及び該第二マスキング部材の穴に充填又は／及び塗布された粉末状の電極材料の密度を高める工程をさらに含むことを特徴とする請求項 31 に記載の方法。

【請求項 33】

前記充填又は／及び塗布する工程と、前記粉末状の電極材料の密度を高める工程を繰り返す工程を含むことを特徴とする請求項 32 に記載の方法。

【請求項 34】

粉末状の電極材料を加熱又は／及び圧着する工程と、第一及び第二のマスキング部材を剥す工程をさらに含む請求項 31 乃至 33 に記載の方法。

【請求項 35】

少なくとも粉末状の電極材料を充填又は／及び塗布する工程が真空下でおこなわれることを特徴とする請求項 31 乃至 34 に記載の方法。

【請求項 36】

さらに、電解質膜を裁断する工程を含むことを特徴とする請求項 31 乃至 35 に記載の

方法。

【請求項 37】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーであって、
請求項 31 乃至 36 に記載の方法により製造された燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー。

【請求項 38】

燃料電池であって、請求項 37 に記載の燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを使用した燃料電池。

【請求項 39】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法であって、電極形状にくりぬかれた穴のあいたマスキング部材を、ガス拡散層又は／及び電極用間接転写フィルムに積層し穴を通して電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填する工程と、マスキング部材を剥がす工程と、電解質膜に転写又は熱圧着する工程とを含むことを特徴とする方法。

【請求項 40】

両極用ガス拡散層又は／及び電極用間接転写フィルムにアノード極及びカソード極を形成し、同時に電解質膜に転写又は圧着する工程を含むことを特徴とする請求項 39 に記載の方法。

【請求項 41】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーであって、
請求項 39 又は 40 に記載の方法により製造された燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー。

【書類名】明細書

【発明の名称】電解質膜、電解質膜複合体、電解質膜複合体の製造方法、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの製造方法、及び燃料電池

【技術分野】

【0001】

本発明は、電解質膜、電解質膜複合体、電解質膜複合体の製造方法、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）の製造方法、及び燃料電池に関する。詳細には、固体高分子電解質膜型燃料電池（PEFC）の電解質膜及び電極に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、固体高分子型燃料電池の電極形成は、電解質膜に直接液状電極インクを塗布し乾燥させて電極を形成する方法、フッ素系フィルムやポリエステル系フィルムに離型処理を行ったものに液状電極インクを塗布し乾燥させた後、前記電解質膜に加熱、加圧転写して電極を形成させる方法、一般的にカーボンペーパーと呼ばれるガス拡散層の片面に液状電極インクを乾燥させて前記電解質膜あるいは所望する厚みに予め電極を形成させた電解質膜に熱圧着させる方法等がある（例えば、特許文献1参照。）。一方、将来のトータルのVOC対応として液状電極インクのかわりに触媒の白金等を担持したカーボンと電解質溶液の混合体からなる粉末状電極材料を電解質膜などに塗布する方法が試みられている。

【0003】

【特許文献1】特表平9-501535号公報

【特許文献2】特開平4-135670号公報

【特許文献3】特開平4-176363号公報

【特許文献4】特開平4-210273号公報

【特許文献5】特開平5-76819号公報（特に、図3参照。）

【非特許文献1】DuPont社、Product Information、「DuPont Nafion PFSA Membranes NR-111 and NR-112」、NAE201 (Nov2002)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを作成する方法として、電解質膜に直接液状電極インクを塗布する方法がある。この方法は、塗膜にクラックやピンホールが発生しないように、電解質膜に直接液状電極インクを塗布した場合には、密着性、性能の面と工程を少なくできるためコストを低減できることから良いとされている。

しかしながら、電解質膜に直接液状電極インクを塗布する場合、大きくわけて次の2つの問題があった。

【0005】

第一の問題は、電解質膜が、液状電極インクの溶媒である水やアルコール系溶剤、又は、空気中の湿気と接触することで瞬間的に湿潤あるいは膨潤し、そのままの状態では電解質膜を放置するとすぐ原型をとどめないぐらい変形することである。

【0006】

第二の問題は、電解質膜に塗布すべき液状電極インクのウェット膜厚が大きいということである。液状電極インク中に含まれる固形分は、約5～15パーセントである。燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの乾燥重量は、白金などの触媒の含有量によっても異なるが、約0.5～6mg/cm²の範囲が一般的であり、更に、多くは、約0.8～3mg/cm²の範囲である。これらから液状電極インクのウェット膜厚を換算すると、電極インクは、おおよそ50～600μmのウェット膜厚を有している。一般的な塗装作業であっても、このように大きなウェット膜厚を有する塗料を基体上に塗布する場合には、垂れ、クラック、火脹れ現象のプリスター、マイクロバブルなどの泡の集合体であってピン

ホールを伴うワキ現象などを除去することは大変な作業となる。

【0007】

上記問題を解決するための対策としては、電極インクが電解質膜に到達するまでの間に電極インクの濃度を上げること、すなわち、電極インクが電解質膜に到達するまでの間にできるだけ多くの溶媒を電極インクから揮発させることである。そのためには、従来の液膜塗布の代表格であるロールコート、スロットノズルによるダイコート、カーテンコート、スクリーン印刷などの工法を使用するのではなく、電極インクを液滴しかもできるだけ微細な粒子にして大気との接触を多くしつつ塗布するスプレー工法を選択することが重要である。ところが、スプレー工法は、液体を粒子化して塗布するので、粒子が飛散しやすく、所望するシャープな輪郭をもった電極パターンを形成することは不可能であった。そこで、マスキング部材の使用は絶対条件であった。

【0008】

例えば、特許文献2、特許文献3、及び特許文献4に記載されている方法を用いれば、一般塗装分野では自動マスキング方法として簡便ではあるが、電極インクの塗布ではライン上でマスキング部材に付着し乾燥した電極インクを溶媒でもって除去する必要性が生じ、触媒ゆえに熱をもつと発火や、溶媒と接触すると引火の危険があった。これらの作業で生じた電極インクを含んだ多量の廃液やウエスなどは、触媒メーカーなどに送られ白金の再利用がおこなわれる。不必要な洗浄溶媒が使用され溶媒コストがかかるほか、作業終了後、作業者がマスキング部材を清掃するコストも発生していた。溶媒は危険物扱いのため、また、触媒は、上記のような課題を抱えているため輸送手段にもコストがかかる。

また、電解質膜に電極インク又は／及び粉末状の電極材料をスプレー塗布する場合には、マスキング部材が浮いてマスキング部材と電解質膜との間の隙間に電極インク又は／及び粉末状の電極材料が染み込んでしまうという問題もある。このような場合には、所望のパターンの電極を正確に形成することができないという問題を生じる。

【0009】

本発明は上記した問題に鑑みてなされたものであり、所望するパターンの電極を高品質のもと、高効率の生産性をもって製造するための電解質膜、電解質膜複合体、電解質膜複合体の製造方法、燃料電池用電解質膜・電極アSEMBリー、燃料電池用電解質膜・電極アSEMBリーの製造方法、及び燃料電池を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0010】

前述した課題を解決する為に本発明では次のような電解質膜とした。

すなわち、電極を付与する前の燃料電池用電解質膜の少なくとも片面に所望する電極形状にくりぬかれた穴を有するマスキング部材を積層した電解質膜とした。

このような構成とすることにより、電解質膜とマスキング部材との間に隙間ができず、所望の形状の電極を精度よく形成することができる。

また、マスキング部材を別に塗布装置に装填する必要がなくなり、本発明による電解質膜を塗布装置に装填するだけで、所望する形状（パターン）の電極を精度よく製造することができる。

さらに、本発明によれば、マスキング部材に付着し乾燥した電極インクは、マスキング部材と一緒に巻き取られるので、巻き取ったマスキング部材を、触媒メーカーに輸送して白金の再利用が行われる。しがたって、マスキング部材を清掃するための洗浄溶媒や清掃工程を不要にすることができる。

【0011】

電解質膜の両面に、ほぼ相似形の所望する電極形状にくりぬかれた穴を有するマスキング部材を積層してもよい。

マスキング部材は、電解質膜に自着又は微粘着剤を介して貼り付けられているとよい。

電解質膜及び／又はマスキング部材がウェブであって、電解質膜がロールストックになっているとよい。

電解質膜は、枚葉シートに断裁されていてもよい。

少なくとも一つのマスキング部材上にガスバリア性のシート又はウェブが積層されていてもよい。

マスキング部材の厚みは、後工程で形成する電極の厚みとほぼ同じかそれより厚いとよい。

電解質膜は、気体遮断性包装材で包まれていてもよい。

【0012】

また、本発明の燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーは、前記した燃料電池用電解質膜のマスキング部材の穴を通して電解質膜に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填し、その後、マスキング部材を剥がすことにより製造した。

マスキング部材が積層された燃料電池用電解質膜を使用したことにより、高い生産性で精度よく形成された燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーとすることができた。

電極インク又は／及び粉末状の電極材料は、電解質膜に固着されているとよい。

特に、電極インク又は／及び粉末状の電極材料は、乾燥又は加熱又は／及び圧着により電解質膜に固着されているとよい。

前記した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを使用して燃料電池を製造するとよい。

。

【0013】

また、本発明の電解質膜複合体は、電解質膜と複数の穴が設けられたマスキング部材とからなり、マスキング部材が電解質膜の一方の面に引き剥がし可能に貼り付けられている。

。

穴は、燃料電池の燃料電極の形状に形成されているとよい。

電解質膜複合体は、さらに、ガスバリア性シートを含んでいるとよい。

電解質膜複合体は、さらに、電解質膜の他方の面に引き剥がし可能に貼り付けられたマスキング部材を含んでいるとよい。

ガスバリア性シートは、マスキング部材又は電解質膜に引き剥がし可能に貼り付けられているとよい。

マスキング部材及びガスバリア性シートは、自己粘着性材料でつくられていて、接着剤を使用せずに、電解質膜に引き剥がし可能に貼り付けられているとよい。

電解質膜複合体は、巻かれてロールストックにされているとよい。

電解質膜複合体のロールストックは、気体遮断性包装材で包まれているとよい。

【0014】

本発明による電解質膜とマスキング部材とからなる電解質膜複合体を製造する方法は、マスキング部材に所望の形状の穴を開ける工程と、その後、マスキング部材と電解質膜を貼り合わせる工程とからなる。

また、本発明による電解質膜とマスキング部材とからなる電解質膜複合体を製造するもう一つの方法は、マスキング部材と電解質膜を貼り合わせる工程と、その後、マスキング部材に所望の形状の穴を開ける工程とからなる。

【0015】

本発明による燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法は、電解質膜と複数の穴が設けられたマスキング部材とからなる電解質膜複合体のロールストックを回転可能に設置する工程と、ロールストックから電解質膜複合体を引き出す工程と、電解質膜複合体を搬送しつつマスキング部材の複数の穴を通して電解質膜に電極インクあるいは粉末状の電極材料を塗布する、あるいはそれらを積層する工程と、それらを電解質膜に固着させる工程と、マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなる。特に粉末状の電極材料を用いる場合、電解質膜への固着は加熱圧着方法を採用すると良い。

また、本発明による燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造するもう一つの方法は、電解質膜と、複数の穴が設けられたマスキング部材と、ガスバリア性シートとからなる電解質膜複合体のロールストックを回転可能に設置する工程と、ロールストックから電解質膜複合体を引き出す工程と、ガスバリア性シートを剥がす工程と、電解質膜複合体を搬送しつつマスキング部材の複数の穴を通して該電解質膜に電極インクあるいは粉末状の

電極材料を塗布する、あるいはそれらを積層する工程と、それらを電解質膜に固着させる工程と、マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなる。

さらにまた、本発明による燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造するもう一つ別の方法は、電解質膜と、該電解質膜の第一面に貼り付けられ、複数の穴が設けられた第一マスキング部材と、該電解質膜の第二面に貼り付けられ、複数の穴が設けられた第二マスキング部材とからなる電解質膜複合体のロールストックを回転可能に設置する工程と、ロールストックから電解質膜複合体を引き出す工程と、電解質膜複合体を搬送しつつ第一マスキング部材の複数の穴を通して電解質膜の第一面に電極インクあるいは粉末状の電極材料を塗布する、あるいはそれらを積層する工程と、それらを電解質膜に固着させる工程と、第一マスキング部材を電解質膜から剥がす工程と、電解質膜及び第二マスキング部材を反転させる工程と、電解質膜及び第二マスキング部材を搬送しつつ第二マスキング部材の複数の穴を通して電解質膜の第二面に電極インクあるいは粉末状の電極材料を塗布する、あるいはそれらを積層する工程と、それらを電解質膜に固着させる工程と、第二マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなる。

さらにまた、本発明による燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法は、電解質膜と少なくとも一つの穴が設けられたマスキング部材とからなる電解質膜複合体の枚葉シートを設置する工程と、マスキング部材の少なくとも一つの穴を通して該電解質膜に電極インク又は／及び粉末状の電極材料を塗布又は充填する、あるいはそれらを積層する工程と、それらを電解質膜に固着させる工程と、マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなることを特徴とする方法。

さらにまた、本発明による燃料電池電解質膜・電極アセンブリーを製造するもう一つの方法は、電解質膜の両側に積層された第一マスキング部材と第二マスキング部材の複数の穴を通して粉末状の電極材料を充填または塗布する工程と、必要に応じてロール等での圧着や、振動、真空下での脱気、あるいはそれらの組み合わせによりかさ密度を高める工程と、さらに必要に応じてそれらの工程を繰り返しおこなう工程と、所望する膜厚になったとき加熱又は／及び圧着して電解質膜に固着させる工程と、第一及び第二マスキング部材を電解質膜から剥がす工程とからなる。

燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法は、電解質膜を裁断する工程を含んでいてもよい。

【0016】

本発明による燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーは、前記した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造する方法で製造されたものである。

前記した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを使用して燃料電池を製造するとよい。

【発明の効果】

【0017】

本発明によれば、電解質膜に電極インクや粉末状の電極材料を所望するパターンで正確に塗布し、燃料電池の電極形成の生産性を上げることができ、特に有用になるものである。

本発明によれば、電解質膜とマスキング部材との間に隙間ができず、所望の形状の電極を精度よく形成することができる。

また、マスキング部材を別に塗布装置に装填する必要がなくなり、本発明による電解質膜を塗布装置に装填するだけで、所望する形状（パターン）の電極を精度よく製造することができる。

さらに、本発明によれば、マスキング部材に付着し乾燥した電極インクは、マスキング部材と一緒に巻き取られるので、巻き取ったマスキング部材を、触媒メーカーに輸送して白金の再利用が行われる。しがたって、マスキング部材を清掃するための洗浄溶媒や清掃工程を不要にすることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

以下、本発明を、好ましい実施形態に基づき図面を参照しながら説明する。ただし、以下の実施形態に記載されている構成部品の寸法、材質、形状、その相対配置などは、特に特定の記載がない限りは、この発明の範囲をそれらのみに限定する趣旨のものではない。

【実施例 1】

【0019】

(電解質膜複合体)

図 1 は、本発明による電解質膜複合体 1 の斜視図である。図 2 は、電解質膜複合体 1 の分解図である。

【0020】

電解質膜複合体 1 は、電解質膜 11 と、電解質膜 11 の第一面 11a に貼り付けられたマスキング部材 12 と、電解質膜 11 の第二面 11b に貼り付けられたマスキング部材 13 とからなる。電解質膜 11 は、電子を通さずイオンのみを通す特性を有し、固体高分子型燃料電池に使用される。電解質膜 11 は、固体高分子電解質膜、例えば、パーフルオロスルホン酸系ポリマーを使用した電解質膜、米国 DuPont 社の「NAFION」(登録商標)、芳香族炭化水素系エンジニアリングプラスチックを使用した電解質膜、炭素系材料のフラーレン(C₆₀)を構成材料に使用した電解質膜、ポリエステルフィルムに設けられた無数の小孔に電解質を形成した電解質膜などがある。マスキング部材 12, 13 は、紙、プラスチック、好ましくは脱塩ビ素材などからなるシート状部材、フィルム状部材、あるいはウェブである。電解質膜及びマスキング部材の材料を例示したが、本発明は、これらの材料に限定して解釈されるものではない。

【0021】

マスキング部材 12, 13 には、所定の形状の複数の穴 12a、13a が設けられている。複数の穴 12a、13a は、燃料電池の燃料電極を形成するために設けられている。すなわち、所定の形状は、燃料電極の形状に対応しているとよい。マスキング部材 12, 13 の厚さは、燃料電極の厚さとはほぼ同じかそれよりも大きい。マスキング部材 12, 13 の厚さが、燃料電極の厚さよりも薄いと、塗布された電極インクが穴から漏れて燃料電極の形成が困難になるからである。

【0022】

マスキング部材 12, 13 は、電解質膜 11 から引き剥がすことができるように電解質膜 11 に貼り付けられている。引き剥がす際に、電解質膜 11 に傷をつけることがないように、また、電解質膜 11 が汚染されることがないように、マスキング部材 12, 13 は、電解質膜サプライヤーが承認する微粘着剤で電解質膜 11 に貼り付けられているとよい。または、マスキング部材 12, 13 は、例えばセロハンテープのように感圧式粘着剤が塗布されたフィルムであってもよく、該フィルムを電解質膜 11 に貼り付けてもよい。あるいは、マスキング部材 12, 13 は、接着剤を使わずに付着する特性を有する自己粘着性フィルムであってもよく、該自己粘着性フィルムを電解質膜 11 に貼り付けてもよい。通常、電解質膜サプライヤーから供給される形態、例えば DuPont 社の Nafion (商標登録) の両サイドに積層されているバックアップフィルムやカバーシートに所望するパターンの穴をくり貫き加工すればよい。Nafion のバックアップフィルムやカバーシートについては、非特許文献 1 に記載されている。

【0023】

(保管方法)

電解質膜 11 は、外気に晒されると湿気を吸収して膨潤してしまうため、外気から遮断して保管することが望ましい。

図 3 は、ロール状に巻かれた電解質膜複合体 1 が包装材 20 で包まれている状態を示す図である。電解質膜複合体 1 のロールストックを包装材 20 で密封することにより電解質膜 11 を外気から遮断して保管することができる。包装材 20 は、好ましくは水蒸気遮断材フィルムであるとよい。

【0024】

図4は、電解質膜複合体1の一面にガスバリア性シート14を貼り付けたものを示す図である。ガスバリア性シート14は、マスキング部材12の上に微粘着剤で引き剥がし可能に貼り付けられている。なお、ガスバリア性シート14が自己粘着性を有する材料からなる場合には、接着剤を使用せずにガスバリア性シート14をマスキング部材12に貼り付けることができる。

図5に示すように、ガスバリア性シート14が外側になるように、電解質膜複合体1を巻くことにより、ガスバリア性シート14により電解質膜複合体1が取り囲まれる。これによって、気体遮蔽材で包装しなくても、気体遮蔽された電解質膜複合体1のロールストックとすることができる。なお、さらに、気体遮蔽性の包装材20で包装すれば、気体遮蔽性能を向上することができる。

【0025】

ガスバリア性シート14を電解質膜複合体1の両面にそれぞれ貼り付けてもよい。すなわち、マスキング部材12、13のそれぞれにガスバリア性シート14を貼り付けてもよい。

【0026】

(燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの製造方法)

図6は、電解質膜複合体1に電極インクを塗布する塗布装置30の概略構成図である。

電解質膜11の一方の面に燃料電極(アノード)を形成し、他方の面に空気電極(カソード)を形成する。

塗布装置30は、第一塗布装置31と第二塗布装置32とを有する。第一塗布装置31は、第二塗布装置32の上方に配置されている。第一塗布装置31と第二塗布装置32は、ほぼ同一の構成であるので、第一塗布装置31について説明し、同一の構成要素については同一の参照符号を用いて第二塗布装置32の説明は省略する。

【0027】

第一塗布装置31は、駆動ローラ34と、従動ローラ36と、駆動ローラ34及び従動ローラ36に張設されたスクリーンベルト(循環移動体)38と、真空吸着及び加熱装置40と、電極インクを塗布するノズル42とを有する。駆動ローラ34が矢印Aで示す時計回り方向に回転することにより、スクリーンベルト38が矢印Bで示す時計回り方向に回転する。

第二塗布装置32においては、駆動ローラ34が矢印Cで示す反時計回り方向に回転することにより、スクリーンベルト38が矢印Dで示す反時計回り方向に回転する。

【0028】

スクリーンベルト38の上には、下敷きウェブ44が配置されている。下敷きウェブ44は、紙などの通気性のある材料からなる。下敷きウェブ44は、巻取り心棒46から矢印Eで示す方向に引き出されて、スクリーンベルト38に吸着されて矢印Bで示す方向に搬送され、巻取り心棒48に巻き取られる。同様に、第二塗布装置32において、下敷きウェブ44は、巻取り心棒46から矢印Fで示す方向に引き出されて、スクリーンベルト38に吸着されて矢印Dで示す方向に搬送され、巻取り心棒48に巻き取られる。

【0029】

電解質膜複合体1のロールストック50は、塗布装置30の巻取り心棒52に回転可能に装着される。巻取り心棒52から、電解質膜複合体1が矢印Gで示す方向に引き出される。電解質膜複合体1は、下敷きウェブ44の上に吸着されて、スクリーンベルト38により矢印Bで示す方向に搬送される。

【0030】

電解質膜複合体1にガスバリア性シート14が貼り付けられている場合には、案内ローラ54を介してガスバリア性シート14を巻取り心棒56に巻き取る。これによって、ガスバリア性シート14が電解質膜複合体1から剥離される。尚、電解質膜複合体1にガスバリア性シート14が貼り付けられている場合に、第一塗布装置31において、電解質膜複合体1のロールストック50を反転させて、下敷きウェブ44を使用せずに、ガスバリア性シート14がスクリーンベルト38に吸着されるようにすることもできる。すなわち

、ガスバリア性シート14を下敷きウェブ44の代わりに使用することができる。これによって、巻取り心棒46、48、56の機構は省略して、装置と部材のコストを低減させることができる。

【0031】

電解質膜複合体1及び下敷きウェブ44は、真空吸着及び加熱装置40によりスクリーンベルト38に吸着され加熱される。ノズル42は、電解質膜複合体1のマス킹部材12の穴12aに向かって電極インクを塗布する。穴12aは所望の形状に形成されているので、所望の形状の燃料電極を電解質膜11の第一面11a上に容易に形成することができる。本発明においては、電解質膜複合体1にマス킹部材12、13がすでに貼り合わせてあるので、マス킹部材を別に用意する必要がなく、製造工程を簡略化することができる。

【0032】

ノズル42がスロットノズルの場合には、下敷きウェブ44の幅は、電解質膜複合体1の幅とほぼ同じでもよい。本発明においては、ノズル42又は塗布器のタイプは特に限定されないが、スプレイノズルの方が液膜で塗布するカーテンコートや、液体を介して接触式塗布方法であるロール、スクリーン、スロットノズルなどよりよい。電解質膜は、電極インクの溶媒により膨潤するという問題がある。したがって、電極インクが電解質膜に到達するまでの間にできるだけ多くの溶媒を電極インクから揮発させることが重要である。そのためには、スプレイノズルにより、電極インクを微細な粒子にして大気との接触を多くしつつ塗布するとよい。ところが、スプレイノズルは、液体を粒子化して塗布するので、粒子が飛散しやすい。そこで、ノズル42がスプレイノズルである場合には、下敷きウェブ44の幅を電解質膜複合体1の幅よりも広くしたほうがよい。ノズル42から吐出された電極インクがわずかに飛散して下敷きウェブ44上に広がることがある。このような飛散した電極インクは、下敷きウェブ44に付着する。下敷きウェブ44は、巻取り心棒48に巻き取られる。

このように、下敷きウェブ44を使用することにより、飛散した電極インクを回収することができる。したがって、環境衛生上良好な塗布装置を提供することができる。また、電極インクには白金が含まれているので、高価な白金を回収して再使用することができる。

【0033】

電解質膜複合体1の上側のマス킹部材12は、案内ローラ58を介して上方の巻取り心棒60に巻き取られる。これによって、マス킹部材12が電解質膜複合体1から剥離される。尚、マス킹部材12は、剥離することなく下流に進み最終工程で巻き取られてもよい。

電解質膜11に塗布された電極インクは、乾燥により電解質膜11に固着される。また、真空室を通して乾燥させたり、熱風により加熱したり、加熱ローラを介して加熱したりして電極インクを電解質膜11に固着してもよい。なお、固着工程は、最終工程で行ってもよい。

【0034】

電解質膜11とマス킹部材13は、下方に配置された案内ローラ62により第二塗布装置32へ案内される。このとき、電解質膜11とマス킹部材13は案内ローラ62により搬送方向が矢印Hで示す方向から矢印Iで示す方向に反転され、これによって、マス킹部材13が上側になる。

電解質膜11とマス킹部材13は、案内ローラ64により案内されて、第二塗布装置32の下敷きウェブ44の上に吸着されて、スクリーンベルト38により矢印Dで示す方向に搬送される。第一塗布装置31で燃料電極が形成された電解質膜11の第一面11aを下向きにして第一面11aを下敷きウェブ44に接触させ、マス킹部材13が上向きになる。

【0035】

電解質膜11、マス킹部材13、及び下敷きウェブ44は、真空吸着及び加熱装置

40によりスクリーンペルト38に吸着され加熱される。ノズル42は、マスキング部材13の穴13aに向かって電極インクを塗布する。穴13aは所望の形状に形成されているので、所望の形状の燃料電極を電解質膜11の第二面11b上に容易に形成することができる。

【0036】

マスキング部材13は、案内ローラ66を介して上方の巻取り心棒68に巻き取られる。これによって、マスキング部材13が電解質膜11から剥離される。

電解質膜11に塗布された電極インクは、乾燥により電解質膜11に固着される。また、真空室を通して乾燥させたり、熱風により加熱したり、加熱ローラを介して加熱したりして電極インクを電解質膜11に固着してもよい。

【0037】

電解質膜11は、巻取り心棒70に巻き取られる。あるいは、電解質膜11は、裁断装置（不図示）へ搬送されて所望の大きさに裁断されて、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーにされる。このようにして、電解質膜11に燃料電極（アノード）と空気電極（カソード）が形成された燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーとなる。

このようにして製造した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）を使用して燃料電池を製造する。

【実施例2】

【0038】

実施例1においては、電解質膜の両面にマスキング部材を貼り付けた例を示したが、以下の実施例2においては、電解質膜の片面のみにマスキング部材を貼り付けた例を示す。

【0039】

（電解質膜複合体）

図7は、本発明による電解質膜複合体101の斜視図である。図8は、電解質膜複合体101の分解図である。

電解質膜複合体101は、電解質膜111と、電解質膜111の第一面111aに貼り付けられたマスキング部材112とからなる。マスキング部材112には、所定の形状の複数の穴112aが設けられている。複数の穴112aは、燃料電池の燃料電極を形成するために設けられている。マスキング部材112の厚さは、燃料電極の厚さとほぼ同じかそれよりも大きい。

【0040】

マスキング部材112は、電解質膜111から引き剥がすことができるように電解質膜111に貼り付けられている。引き剥がす際に、電解質膜111を傷つけないようにマスキング部材112は、微粘着剤で電解質膜111に貼り付けられている。あるいは、マスキング部材112は、接着剤を使わずに付着する特性を有する自己粘着性フィルムであるとよく、該自己粘着性フィルムを電解質膜111に貼り付けてもよい。

【0041】

（保管方法）

図3に示した実施例1と同様に、電解質膜複合体101をロール状に巻いてロールストックとし、該ロールストックを気体遮断性包装材で包んで、電解質膜複合体101を保管する。マスキング部材112が外側になるように、電解質膜複合体101を巻くとよい。

【0042】

別な保管方法として、電解質膜複合体101の一面にガスバリヤ性シート114を貼り付けてもよい。図9は、電解質膜複合体101の電解質膜111の第二面111bにガスバリヤ性シート114を貼り付けたものを示す図である。ガスバリヤ性シート114は、電解質膜111に微粘着剤で引き剥がし可能に貼り付けられている。微粘着剤の代わりに、接着剤を使用したり、ベルクロ（登録商標）のような機能を表面にもたせたりして、貼り付けてもよい。なお、ガスバリヤ性シート114が自己粘着性を有する材料からなる場合には、接着剤等を使用せずにガスバリヤ性シート114を電解質膜111に貼り付けることができる。図10は、電解質膜複合体101のマスキング部材112にガスバリヤ性

シート 114 を貼り付けたものを示す図である。

【0043】

ガスバリア性シート 114 を電解質膜複合体 101 の両面にそれぞれ貼り付けてもよい。すなわち、電解質膜 111 とマスキング部材 112 のそれぞれにガスバリア性シート 114 を貼り付けてもよい。

【0044】

図 5 に示した実施例 1 と同様に、ガスバリア性シート 114 が外側になるように、電解質膜複合体 101 を巻くことにより、ガスバリア性シート 114 により電解質膜複合体 101 が取り囲まれる。これによって、気体遮蔽材で包装しなくても、気体遮蔽された電解質膜複合体 101 のロールストックとすることができる。なお、さらに、気体遮蔽材の包装材料で包装すれば、気体遮蔽性能を向上することができる。

【0045】

(燃料電池用電解質膜・電極アセンブリの製造方法)

図 11 及び図 12 は、電解質膜複合体 101 に電極インクを塗布する塗布装置 130 の概略構成図である。

電解質膜 11 の一方の面に電極を形成する。

塗布装置 130 は、駆動ローラ 134 と、従動ローラ 136 と、駆動ローラ 134 及び従動ローラ 136 に張設されたスクリーンベルト（循環移動体）138 と、真空吸着及び加熱装置 140 と、電極インクを塗布するノズル 142 とを有する。駆動ローラ 134 が矢印 A で示す時計回り方向に回転することにより、スクリーンベルト 138 が矢印 B で示す時計回り方向に回転する。

【0046】

スクリーンベルト 138 の上には、下敷きウェブ 144 が配置されている。下敷きウェブ 144 は、紙などの通気性のある材料からなる。下敷きウェブ 144 は、巻取り心棒 146 から矢印 E で示す方向に引き出されて、スクリーンベルト 138 に吸着されて矢印 B で示す方向に搬送され、巻取り心棒 148 に巻き取られる。

【0047】

電解質膜複合体 101 のロールストック 150 は、塗布装置 130 の巻取り心棒 152 に回転可能に装着される。電解質膜複合体 101 にガスバリア性シート 114 が貼り付けられていない場合には、図 11 に示すように、電解質膜複合体 101 のロールストック 150 を矢印 J で示す時計回り方向に回転することにより電解質膜複合体 101 が引き出されるように、ロールストック 150 を巻取り心棒 152 に装着する。巻取り心棒 152 から、電解質膜複合体 101 が矢印 G で示す方向に引き出される。電解質膜複合体 101 は、下敷きウェブ 144 の上に吸着されて、スクリーンベルト 138 により矢印 B で示す方向に搬送される。

【0048】

ここで、電解質膜複合体 101 のマスキング部材 112 にガスバリア性シート 114 が貼り付けられている場合には、図 11 に示すように、電解質膜複合体 101 のロールストック 150 を矢印 J で示す時計回り方向に回転することにより電解質膜複合体 101 が引き出されるように、ロールストック 150 を巻取り心棒 152 に装着する。ガスバリア性シート 114 がロールストック 150 の外側になるように電解質膜複合体 101 が巻かれているからである。すなわち、上からガスバリア性シート 114、マスキング部材 112、電解質膜 111 の順に配置されるように、ロールストック 150 を塗布装置 130 に装着する。そして、案内ローラ 154 を介してガスバリア性シート 114 を上方の巻取り心棒 156 に巻き取る。これによって、ガスバリア性シート 114 が電解質膜複合体 101 から上方へ剥離される。

【0049】

一方、電解質膜複合体 101 の電解質膜 111 にガスバリア性シート 114 が貼り付けられている場合には、図 12 に示すように、電解質膜複合体 101 のロールストック 150 を矢印 K で示す反時計回り方向に回転することにより電解質膜複合体 101 が引き出さ

れるように、ロールストック150を巻取り心棒152に装着する。ガスバリア性シート114がロールストック150の外側になるように電解質膜複合体101が巻かれているからである。すなわち、上からマスキング部材112、電解質膜111、ガスバリア性シート114の順に配置されるように、ロールストック150を塗布装置130に装着する。そして、案内ローラ180を介してガスバリア性シート114を下方の巻取り心棒182に巻き取る。これによって、ガスバリア性シート114が電解質膜複合体101から下方へ剥離される。

【0050】

電解質膜複合体101及び下敷きウェブ144は、真空吸着及び加熱装置140によりスクリーンベルト138に吸着され加熱される。ノズル142は、電解質膜複合体101のマスキング部材112の穴112aを通して電解質膜111に電極インクを塗布する。穴112aは所望の形状に形成されているので、所望の形状の燃料電極を電解質膜111の第一面111a上に容易に形成することができる。本発明においては、電解質膜複合体101にマスキング部材112がすでに貼り合わせてあるので、マスキング部材を別に用意する必要がなく、製造工程を簡略化することができる。また、マスキング部材112が電解質膜111に自着又は微粘着剤で貼り付けられているので、マスキング部材112が浮き上がることがない。したがって、マスキング部材112と電解質膜111との間に電極インクが染み込んで電極形状が不良になることを防止できる。

【0051】

マスキング部材112は、案内ローラ158を介して上方の巻取り心棒160に巻き取られる。これによって、マスキング部材112が電解質膜111から剥離される。なお、マスキング部材112は、最終工程で剥離されてもよい。

電解質膜111に塗布された電極インクは、乾燥により電解質膜111に固着される。また、真空室を通して乾燥させたり、熱風により加熱したり、加熱ローラを介して加熱したりして電極インクを電解質膜111に固着してもよい。なお、固着工程は、最終工程で行ってもよい。

電解質膜111は、巻取り心棒170に巻き取られる。あるいは、電解質膜111は、裁断装置（不図示）へ搬送されて所望の大きさに裁断されて、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーにされる。

このようにして製造した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）を使用して燃料電池を製造する。

【実施例3】

【0052】

（電解質膜複合体の製造方法）

図13は、電解質膜複合体の製造方法を説明する図である。

図13において、マスキング部材のロール210からマスキング部材212を引き出しながら、打ち抜き用ポンチ220で所望の形状の穴212aを打ち抜く。穴212aが打ち抜かれたマスキング部材212にスロットノズル230で穴212aを除いて微粘着剤235を塗布する。電解質膜のロール240から電解質膜211を引き出し、一對の押圧ロール250で電解質膜211とマスキング部材212とを貼り合わせる。このようにして、電解質膜複合体201を製造する。

なお、マスキング部材212が自己粘着性の材料からなるときは、スロットノズル230による接着剤の塗布工程は不要になる。

【0053】

図14は、電解質膜複合体の別の製造方法を説明する図である。

図14において、電解質膜のロール340から電解質膜311を引き出しながら、スロットノズル330で所望の形状に対応する部分315を除いて微粘着剤335を塗布する。マスキング部材のロール310からマスキング部材312を引き出し、一對の押圧ロール350で電解質膜311とマスキング部材312とを貼り合わせる。微粘着剤が塗布されていない部分に対応して、打ち抜き用ポンチ320で所望の形状にマスキング部材312

を打ち抜く。このとき、電解質膜 311 は打ち抜かないように打ち抜き用ポンチ 320 が調整されている。マスキング部材 312 が曲率の大きい小径ローラ 360 に巻きつくと、自己分離作用により打ち抜き片 3.1 2 b が分離され、これをスクレーパ 370 ですくい上げてはがす。このようにして、電解質膜複合体 301 を製造する。

【実施例 4】

【0054】

(燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの製造方法)

実施例 1 および実施例 2 においては、電極インクを電解質膜に塗布することにより、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーを製造した。実施例 4 においては、粉末状の電極材料を使用して、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) を製造する。

【0055】

図 15 は、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) を製造するために、電解質膜複合体に粉末状の電極材料を塗布すなわち充填する充填装置の概略断面図である。

充填装置 500 は、粉末状の電極材料を収容する容器 502 と、容器 502 内に設けられた一対のブラシローラ 504、505 とからなる。

電解質膜 601 と電解質膜 601 の両面に貼り付けられたマスキング部材 602、603 とからなる電解質膜複合体 610 は、容器 502 の開口 502 a を通って矢印 X で示す鉛直上方に搬送される。マスキング部材 602、603 には、所望の形状の穴 602 a、603 a がくりぬかれている。

電解質膜 601 が容器 502 内を通過するときにブラシローラ 504、505 により、粉末状の電極材料がマスキング部材 602、603 の穴 602 a、603 a に塗布すなわち充填される。これによって、電解質膜 601 に所望形状の電極を形成することができる。

なお、本実施例においては、塗布 (又は充填) 手段としてブラシローラ 504、505 を使用しているが、本発明は、ブラシローラに代えて通常のローラで押し込むようにしてもよい。また、ゴムローラや樹脂製ローラを使用して、静電気力で粉末状の電極材料をマスキング部材 602、603 の穴 602 a、603 a を通して電解質膜 601 に吸着させてもよい。さらに充填のかわりに一般塗装用粉体スプレイガンでの塗布や、ロータリースクリーン法でのスキージによる塗布、あるいはそれらに静電気を付与するなど塗布や充填の種類、方法を限定するものではない。

【0056】

充填装置 500 は、ブラシローラ 504、505 の矢印 X で示す搬送方向の下流側にスキージ 506 を設けていてもよい。スキージ 506 は、マスキング部材 602、603 の表面に付着した粉末状の電極材料を除いたり、穴 602 a、603 a に充填された粉末状の電極材料をならしたりする均し部材として作用する。スキージ 506 を設けることにより、余分な電極材料を掻き落とすことができる。なお、スキージ 506 は、図 15 に示した板状部材に限らず、ロール状部材やブラシ状部材であってもよい。

【0057】

充填装置 500 は、ブラシローラ 504、505 の矢印 X で示す搬送方向の下流側に押圧ローラ 508 を設けていてもよい。押圧ローラ 508 は、穴 602 a、603 a に充填された粉末状の電極材料 P のかさ密度を高めるために、電解質膜複合体 610 を押圧する。粉末状の電極材料 P は空気を含んでいるため、ブラシローラ 504、505 で穴 602 a、603 a に充填された粉末状の電極材料のかさ密度は低い。そこで、押圧ローラ 508 により穴 602 a、603 a に充填された粉末状の電極材料 P を押圧することによりかさ密度を所定の密度まで高める。

【0058】

ところで、スキージ 506 及び押圧ローラ 508 の代わりに、図 16 に示すような押圧及び真空回収装置 550 を設けてもよい。押圧及び真空回収装置 550 は、押圧及び駆動ローラ 552 と、テンションローラ 554 と、従動ローラ 556 と、これらのローラ 552、554、556 に張り渡されたベルト 558 とからなる。ベルト 558 は、押圧及び

駆動ローラ 552 により矢印 Y で示す方向に駆動される。

図 17 は、ベルト 558 の平面図である。図 18 は、ベルト 558 の側面図である。ベルト 558 は、マスキング部材 602、603 の所望形状の穴 602a、603a と相補的な形状の穴 558a を有している。すなわち、ベルト 558 は、穴 602a、603a に対応する対応部分 558b と、両端部分 558c と、対応部分 558b と両端部分 558c とを接続する第一接続部 558d と、隣接する対応部分 558b を接続する第二接続部分 558e とからなる。ベルト 558 は、対応部分 558b がマスキング部材 602、603 の穴 602a、603a と一致するように、電解質膜複合体 610 と同期して矢印 Y で示す方向に移動する。対応部分 558b が穴 602a、603a に充填された粉末状の電極材料に接触しているときに、ベルト 558 の両端部分 558c、第一接続部 558d、及び第二接続部分 558e は、マスキング部材 602、603 の表面から離れて隙間を形成している。マスキング部材 602、603 と対向しているベルト 558 の反対側に真空室 560 が設けられている。真空室 560 は、マスキング部材 602、603 の表面に付着している余分な粉末状の電極材料 P を真空力で吸引して回収容器（不図示）に回収する。このとき、マスキング部材 602、603 の穴 602a、603a に充填されている粉末状の電極材料 P は、ベルト 558 の対応部分 558b により覆われているので、真空力により吸い出されることはない。押圧及び駆動ローラ 552 は、ベルト 558 を電解質膜複合体 610 に対して押圧し、それによって穴 602a、603a に充填されている粉末状の電極材料 P が押圧されて、粉末状の電極材料 P のかさ密度を高めることができる。

【0059】

充填装置 500 は、粉末状の電極材料を収容する容器 502 に振動装置 570 を設けていてもよい。ブラシローラ 504、505 が粉末状の電極材料をマスキング部材 602、603 の穴 602a、603a に塗布すなわち充填する際に、振動装置 570 が容器 502 を振動させることにより、穴 602a、603a に充填される粉末状の電極材料のかさ密度を高くすることができる。

【0060】

充填装置 500 は、マスキング部材 602、603 の穴 602a、603a に粉末状の電極材料を真空下で塗布すなわち充填するために、真空室 580 を設けている。真空室 580 は、少なくともブラシロール 504、505 を含んでいる。真空室 580 は、容器 502 を含んでいてもよい。真空室 580 は、スキージ 506 を含んでいてもよい。真空室 580 は、さらに、押圧ローラ 508 を含んでいてもよい。真空室 580 は、回収室 582 及びフィルタ 584 を介して真空ポンプ 586 に接続されている。真空室 580 は、粉末状の電極材料の充填工程で周囲に飛散した粉末状の電極材料を回収することができる。

真空室の真空度を特に問うものではないが、例えば比較的安価な真空ポンプで作りだせる 1 乃至 40 kPa の真空度を持った真空室では粉末状の電極材料のかさ密度を高くして充填するばかりでなく、酸素濃度を極めて低く保持できるので、電極材料のような引火しやすかったり、発火しやすい材料に対して極めて有効である。

【0061】

必要に応じて、充填装置 500 は、ブラシロール 504、505 による充填工程を繰り返し行ってもよい。あるいは、スキージ 506 による均し工程と、充填工程とを繰り返し行ってもよい。あるいは、押圧ローラ 508 による押圧工程と、均し工程と、充填工程とを繰り返し行ってもよい。

【0062】

充填装置 500 から出てきた電解質膜複合体 610 は、固着部（不図示）へ送られる。固着部では、加熱圧力ローラにより粉末状の電極材料を加熱及び圧着して電解質膜 601 に固着する。この固着工程は、マスキング部材 602、603 を剥がした後に行われる。あるいは、マスキング部材 602、603 を剥がす前に固着工程を行ってもよい。このようにして、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）が製造される。

このようにして製造した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）を使用して燃

料電池を製造する。

なお、実施例 4 においては、固着部（不図示）を真空室 580 の外に配置したが、固着部を真空室 580 の内部に配置してもよい。

【実施例 5】

【0063】

（燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの製造方法）

実施例 4 においては、マスキング部材が積層された電解質膜複合体に粉末状の電極材料を塗布すなわち充填して、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）を製造した。実施例 5 においては、マスキング部材が積層されていない電解質膜に粉末状の電極材料を塗布すなわち充填して、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）を製造する。

【0064】

図 19 は、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー（MEA）を製造するために電解質膜に粉末状の電極材料を塗布すなわち充填する充填装置の概略断面図である。

充填装置 700 は、粉末状の電極材料を収容する容器 702 と、容器 702 内に設けられた一対のブラシローラ 704、705 と、マスキング装置 750 とからなる。

マスキング部材 750 は、押圧及び駆動ローラ 752 と、テンションローラ 754 と、従動ローラ 756、757 と、これらのローラ 752、754、756、757 に張り渡されたマスキングベルト 758 とからなる。マスキングベルト 758 は、押圧及び駆動ローラ 752 により矢印 N で示す方向に駆動される。マスキングベルト 758 は、燃料電極（アノード）と空気電極（カソード）を形成するために、穴 758a がくりぬかれている。

【0065】

電解質膜 801 は、二つのマスキングベルト 758 の間に挟まれて、容器 702 の開口 702a を通って矢印 M で示す鉛直上方に搬送される。二つのマスキングベルト 758 の間に挟まれた電解質膜 801 が容器 702 内を通過するときにブラシローラ 704、705 により、粉末状の電極材料がマスキングベルト 758 の穴 758a に塗布すなわち充填される。これによって、電解質膜 801 に所望形状の電極を形成することができる。

なお、本実施例においては、塗布（又は充填）手段としてブラシローラ 704、705 を使用しているが、本発明は、ブラシローラに代えて通常のローラで押し込むようにしてもよい。また、ゴムローラや樹脂製ローラを使用して、静電気力で粉末状の電極材料をマスキングベルト 758 の穴 758a を通して電解質膜 801 に吸着させてもよい。

さらに充填のかわりに一般塗装用の粉体スプレイガンで塗布や、ロータリースクリーン法のスキージによる塗布、あるいはそれらに静電気を付与させたものなど、塗布や充填の方法、種類を限定するものではない。

【0066】

充填装置 700 は、ブラシローラ 704、705 の矢印 M で示す搬送方向の下流側にスキージ 706 を設けていてもよい。スキージ 706 は、マスキングベルト 758 の表面に付着した粉末状の電極材料を除いたり、穴 758a に充填された粉末状の電極材料をならしたりする均し部材として作用する。スキージ 706 を設けることにより、余分な電極材料を掻き落とすことができる。なお、スキージ 706 は、図 19 に示した板状部材に限らず、ロール状部材やブラシ状部材であってもよい。

【0067】

押圧及び駆動ローラ 752 は、マスキングベルト 758 を電解質膜 801 に対して押圧し、それによって穴 758a に充填されている粉末状の電極材料 P が押圧されて、粉末状の電極材料 P のかさ密度を高めることができる。

【0068】

充填装置 700 は、粉末状の電極材料を収容する容器 702 に振動装置 770 を設けていてもよい。ブラシローラ 704、705 が粉末状の電極材料をマスキングベルト 758 の穴 758a に塗布すなわち充填する際に、振動装置 770 が容器 702 を振動させることにより、穴 758a に充填される粉末状の電極材料のかさ密度を高くすることができる。

【0069】

押圧及び駆動ローラ752の下流側で、マスキングベルト758は電解質膜801から離れる。電解質膜801の上には、所望形状の粉末状の電極材料Pが付着している。粉末状の電極材料Pは、一対の加熱圧力ローラ775により加熱及び圧着されて電解質膜801に固着する。このようにして、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) が製造される。

このようにして製造した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) を使用して燃料電池を製造する。

【0070】

充填装置700は、マスキングベルト758の穴758aに粉末状の電極材料を真空中で塗布すなわち充填するために、真空室780を設けている。真空室780内には、ブラシロール704、705、容器702、スキージ706、マスキング装置750、及び加熱圧力ローラ775が設けられている。加熱圧力ローラ775は、真空室780の外に設けてもよい。真空室780は、回収室782及びフィルタ784を介して真空ポンプ786に接続されている。真空室780は、粉末状の電極材料の充填工程で周囲に飛散した粉末状の電極材料を回収することができる。

【0071】

必要に応じて、充填装置700は、ブラシロール704、705による充填工程を繰り返し行ってもよい。あるいは、スキージ706による均し工程と、充填工程とを繰り返し行ってもよい。また、スキージ706の下流側に、押圧ローラ (不図示) を追加してもよい。押圧ローラによる押圧工程と、均し工程と、充填工程とを繰り返し行ってもよい。

【実施例6】

【0072】

(燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの製造方法)

実施例6においては、マスキング部材が積層されていない電解質膜に粉末状の電極材料を塗布すなわち充填して、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) を製造する。

【0073】

図20は、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) を製造するために電解質膜に粉末状の電極材料を塗布する塗布装置の概略断面図である。

塗布装置900は、特許文献5の図3に示されている塗布装置とすることが望ましい。

塗布装置900は、粉末状の電極材料を収容するホッパー902と、ホッパー902内に配置された回転ブラシ904と、所望の電極形状の穴906aがくりぬかれた中空ロール906と、中空ロール906の内側に設けられたスクリーン908と、スクリーン908の内側に配置された圧縮ガス用スリットノズル910とからなる。スクリーン908は、粉末状の電極材料の粒径よりも小さい目を有する。スクリーン908の外形は中空ロール906の内径とほぼ等しく、スクリーン908は中空ロール906に取り付けられて一緒に矢印Sで示す方向に回転する。

【0074】

ホッパー902内の粉末状の電極材料Pは、回転ブラシ904により中空ロール906に設けられた穴906aに充填される。粉末状の電極材料Pは、ホッパー902の吸引口902aからの吸引Vにより安定した充填が行われる。吸引口902aから吸引された粉末状の電極材料は、ホッパー902へ戻して循環させるとよい。

【0075】

穴906aに粉末状の電極材料Pを充填した中空ロール906は、矢印Sで示す方向に回転する。電解質膜951は、矢印S1で示す方向に搬送される。中空ロール906は、搬送される電解質膜951と対向して配置されている。電解質膜951と対向する中空ロール906の反対側に圧縮ガス用スリットノズル910が設けられている。穴906aに充填された粉末状の電極材料Pが圧縮ガス用スリットノズル910に到達すると、圧縮ガス用スリットノズル910から噴出される圧縮ガスにより、粉末状の電極材料Pが電解質膜951に塗布される。穴906aが所望の電極形状に形成されているので、電解質膜9

51 上に塗布された粉末状の電極材料 P は所望の電極形状を有する。電解質膜 951 は、矢印 S1 で示す方向に搬送されて、下流側の一对の加熱圧力ローラ 912 の間に挟まれて、熱及び圧力を与えられ、粉末状の電極材料 P が電解質膜 951 に固着される。このようにして、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) が製造される。

このようにして製造した燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー (MEA) を使用して燃料電池を製造する。

【0076】

なお、塗布装置 900 は、低圧室 920 を設けていてもよい。低圧室 920 に回収装置を設ければ、低圧室 920 内で塗布作業を行うことにより、周囲に飛散した粉末状の電極材料を回収することができる。

【実施例 7】

【0077】

(燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの製造方法)

実施例 7 は、電極インクの塗布すなわち充填と、粉末状の電極材料の塗布すなわち充填とを組み合わせたものである。

図 21 は、電極インク EI と粉末状の電極材料 P とを積層して塗布した例を示す図である。電解質膜複合体 1001 は、電解質膜 1002 と、電解質膜 1002 に積層されたマスキング部材 1003 とからなる。マスキング部材 1003 には、所望の電極形状にくりぬかれた穴 1003a が形成されている。

穴 1003a に、前記した充填装置により、電極インク EI を充填し、次に粉末状の電極材料 P を充填し、その次に電極インク EI を充填することにより、電極インク EI と粉末状の電極材料 P との積層体からなる電極を容易に製造することができる。

尚、電極インク、粉末状電極材料の種類、積層の順序、積層の手段を特に問うものでなく、それらを混合させながら塗布する方法まで含まれるものとする。

【0078】

なお、本発明においては、電解質膜について説明したが、本発明をガス拡散層 (GDL) や間接転写フィルムとして用いられる PTFE や剥離しやすいように処理した PET、PP などの片面に穴のあいたマスキング部材を積層し、電極インクなどを塗布する方法についても適用することができる。すなわち、本発明の電解質膜をガス拡散層や間接転写フィルムに代えたものも本発明の範囲に属する。

【0079】

以上、本発明によれば、所望するパターンの電極を高品質のもと、高効率の生産性をもって製造するための電解質膜、電解質膜複合体、電解質膜複合体の製造方法、燃料電池用電解質膜・電極アセンブリー、及び燃料電池用電解質膜・電極アセンブリーの製造方法を提供することができる。

本発明によれば、電解質膜とマスキング部材との間に隙間ができず、所望の形状の電極を精度よく形成することができる。

また、マスキング部材を別に塗布装置に装填する必要がなくなり、本発明による電解質膜を塗布装置に装填するだけで、所望する形状 (パターン) の電極を精度よく製造することができる。

さらに、本発明によれば、マスキング部材に付着し乾燥した電極インク又は／及び粉末状の電極材料は、マスキング部材と一緒に巻き取られるので、巻き取ったマスキング部材を、触媒メーカーに輸送して白金の再利用が行われる。しがたって、マスキング部材を清掃するための洗浄溶媒や清掃工程を不要にすることができる。

【0080】

本発明は、以上の実施例に限定されるものではなく、その特徴事項から逸脱することなく、他のいろいろな形態で実施することができる。そのため、前述の実施例はあらゆる点で単なる例示にすぎず、限定的に解釈してはならない。本発明の範囲は、特許請求の範囲によって示すものであって、明細書本文には、何ら拘束されない。さらに、特許請求の範囲の均等範囲に属する変形や変更は、すべて本発明の範囲内のものである。

【図面の簡単な説明】

【0081】

【図1】本発明による電解質膜複合体1の斜視図。

【図2】電解質膜複合体1の分解図。

【図3】ロール状に巻かれた電解質膜複合体1が包装材20で包まれている状態を示す図。

【図4】電解質膜複合体1の一面にガスバリア性シート14を貼り付けたものを示す図。

【図5】ガスバリア性シート14が外側になるように、電解質膜複合体1を巻いた状態を示す図。

【図6】電解質膜複合体1に電極インクを塗布する塗布装置30の概略構成図。

【図7】本発明による電解質膜複合体101の斜視図。

【図8】電解質膜複合体101の分解図。

【図9】電解質膜複合体101の電解質膜111の第二面111bにガスバリア性シート114を貼り付けたものを示す図。

【図10】電解質膜複合体101のマスキング部材112にガスバリア性シート114を貼り付けたものを示す図。

【図11】電解質膜複合体101に電極インクを塗布する塗布装置130の概略構成図。

【図12】電解質膜複合体101に電極インクを塗布する塗布装置130の概略構成図。

【図13】電解質膜複合体の製造方法を説明する図。

【図14】電解質膜複合体の別の製造方法を説明する図。

【図15】電解質膜複合体に粉末状の電極材料を塗布すなわち充填する装置の概略断面図。

【図16】押圧及び真空回収装置550を示す図。

【図17】ベルト558の平面図。

【図18】ベルト558の側面図。

【図19】電解質膜に粉末状の電極材料を塗布すなわち充填する充填装置の概略断面図。

【図20】電解質膜に粉末状の電極材料を塗布する塗布装置の概略断面図。

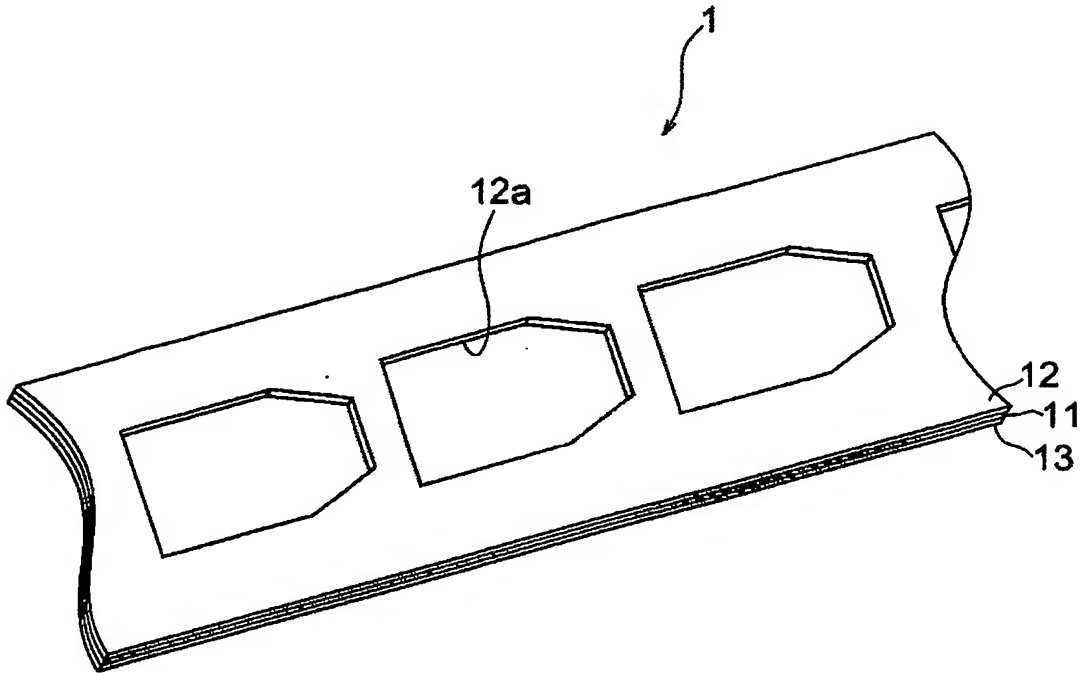
【図21】電極インクEIと粉末状の電極材料Pとを積層して塗布した例を示す図。

【符号の説明】

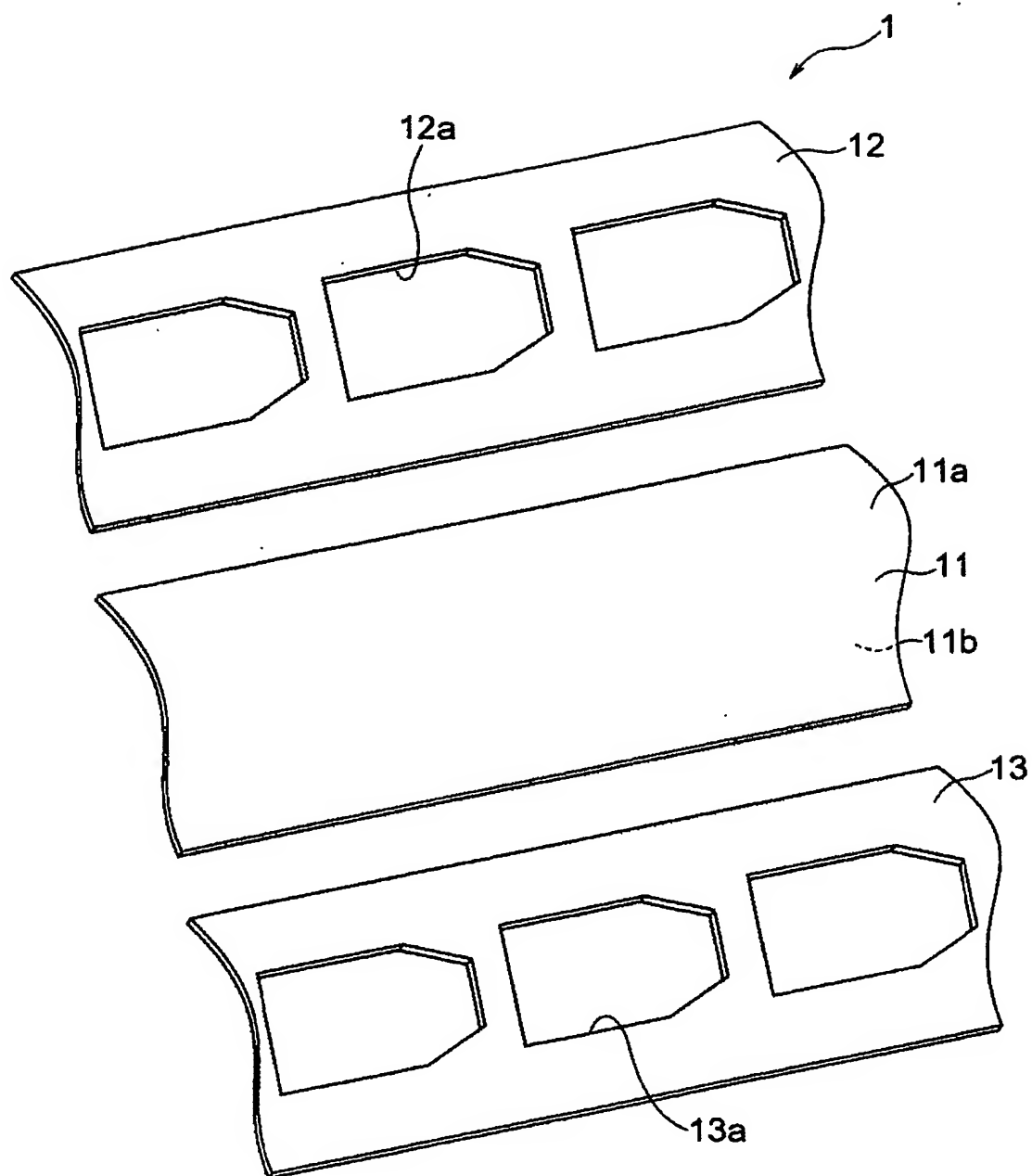
【0082】

1、101	電解質膜複合体
11、111	電解質膜
12、13、112	マスキング部材
12a、13a、112a	穴
14、114	ガスバリア性シート
30、130	塗布装置
50、150	ロールストック
500、700、900	充填装置
P	粉末状の電極材料

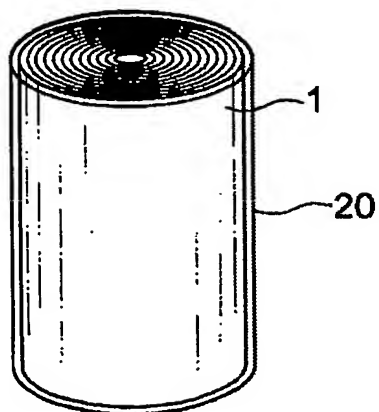
【書類名】図面
【図 1】



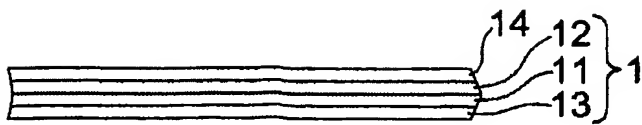
【図 2】



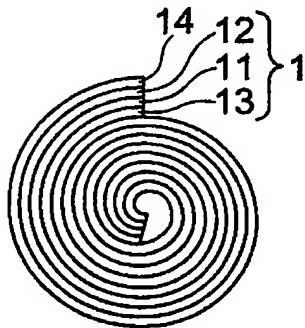
【図 3】



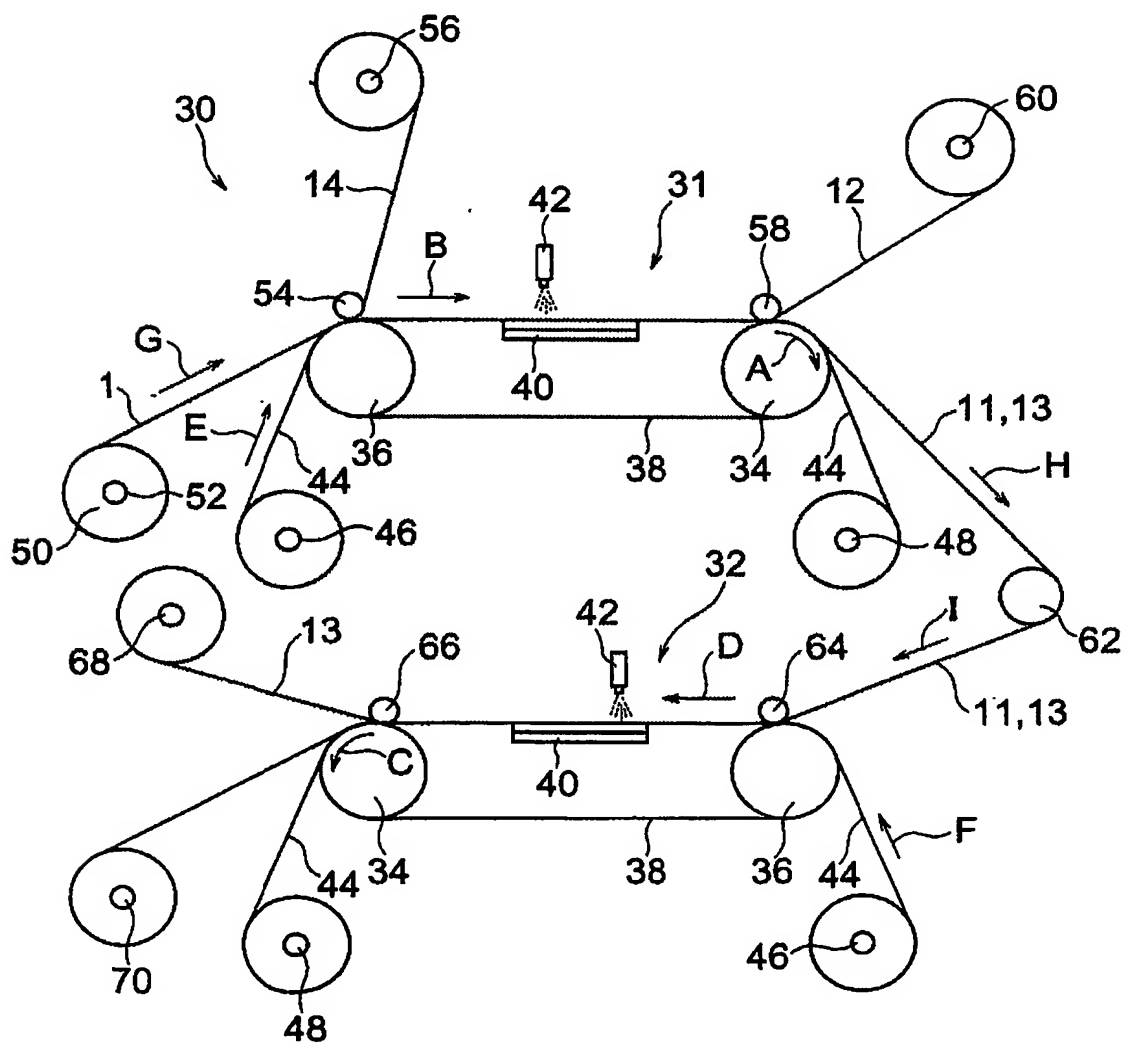
【図 4】



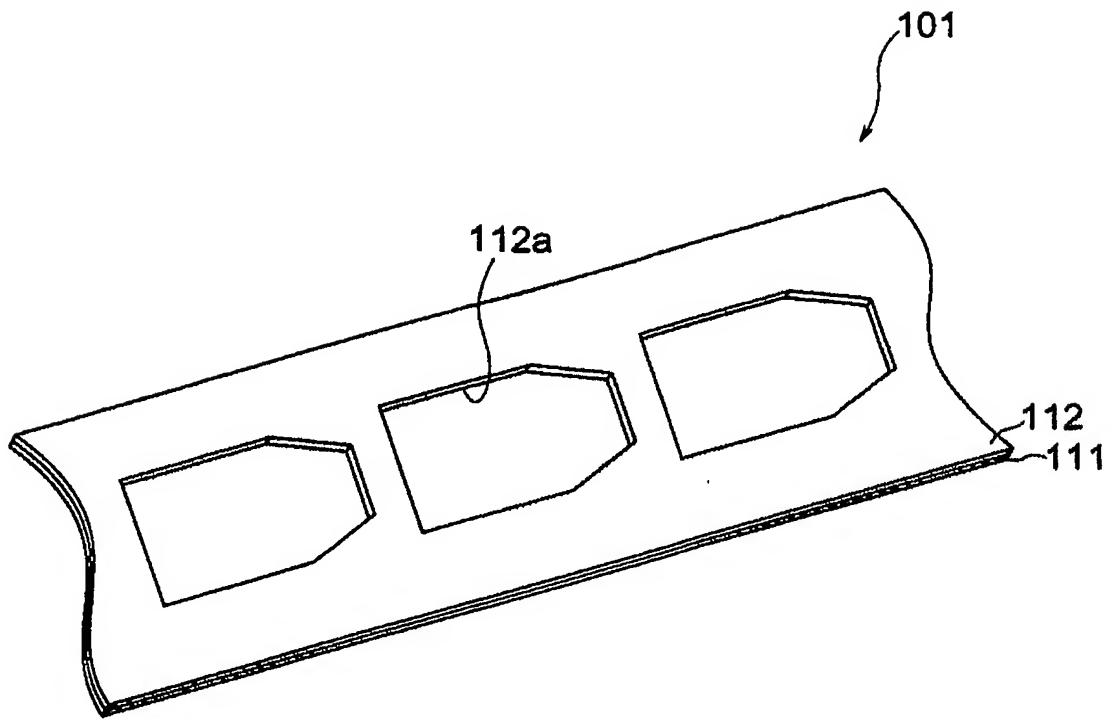
【図 5】



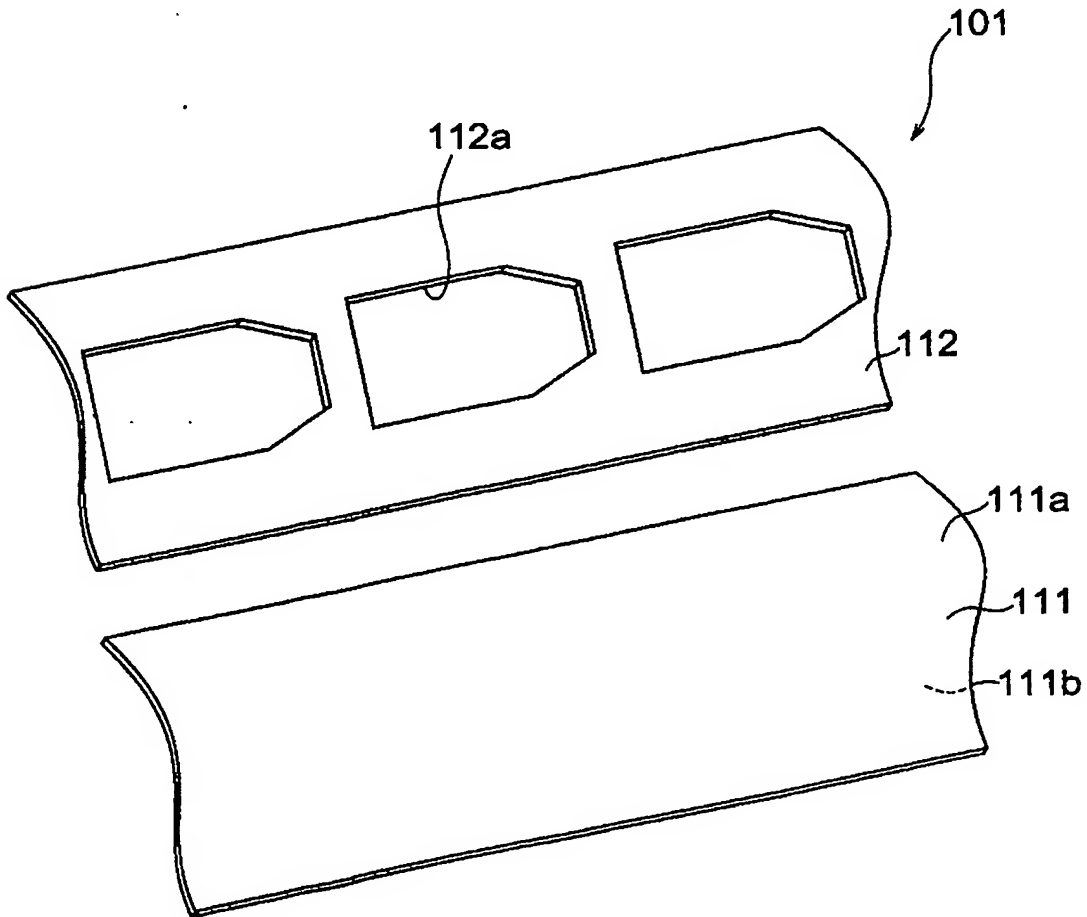
【図 6】



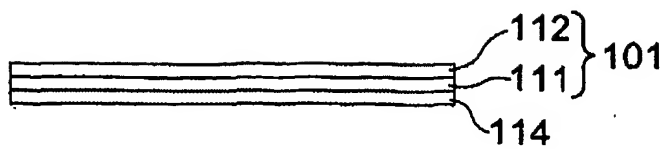
【図 7】



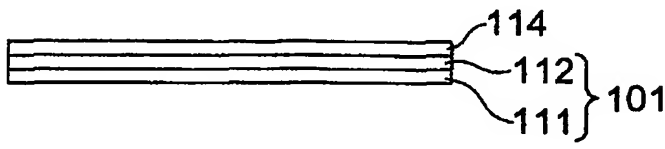
【図 8】



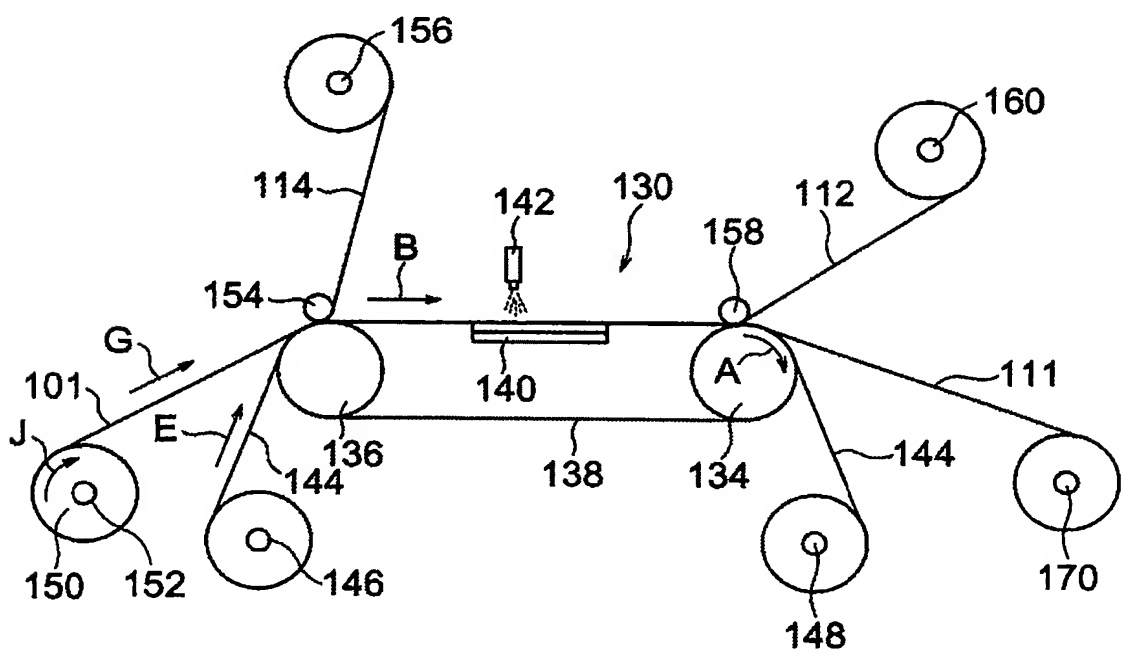
【図 9】



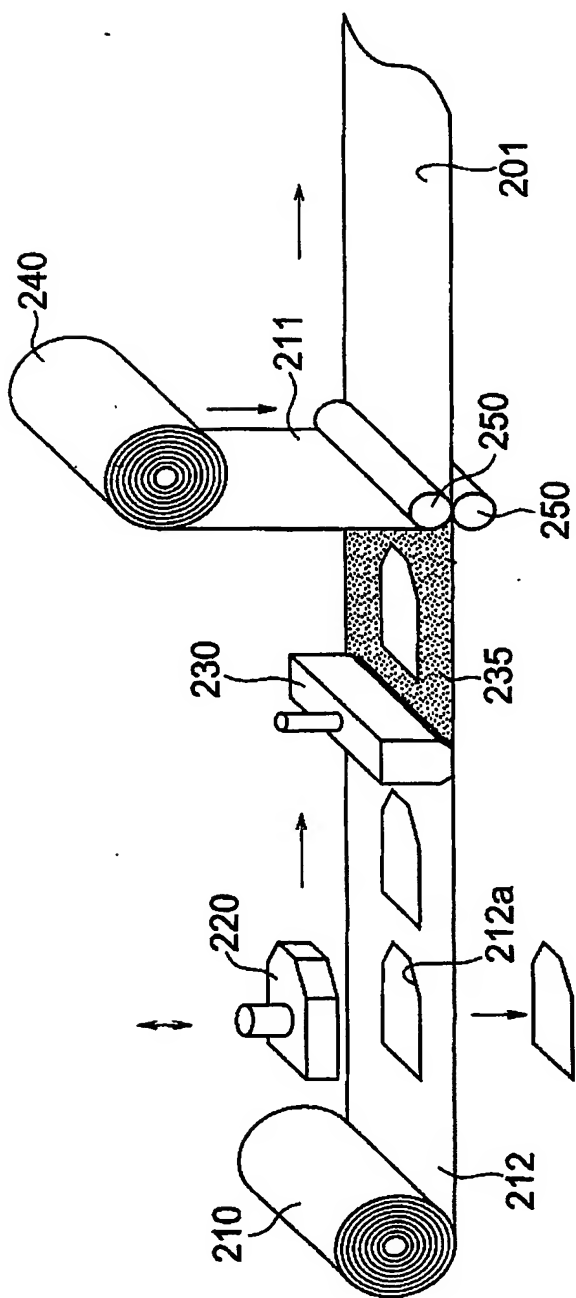
【図 10】



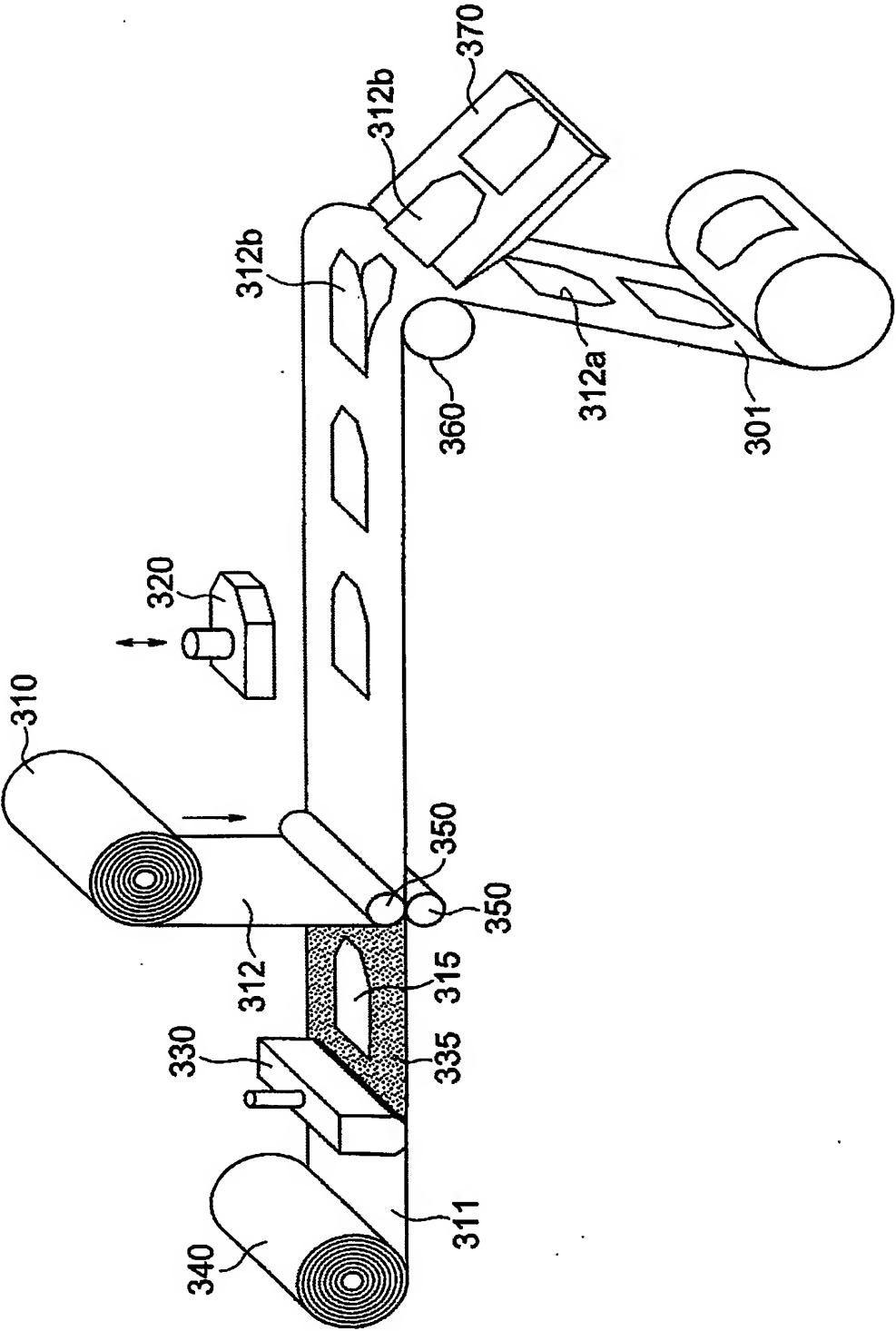
【図 11】



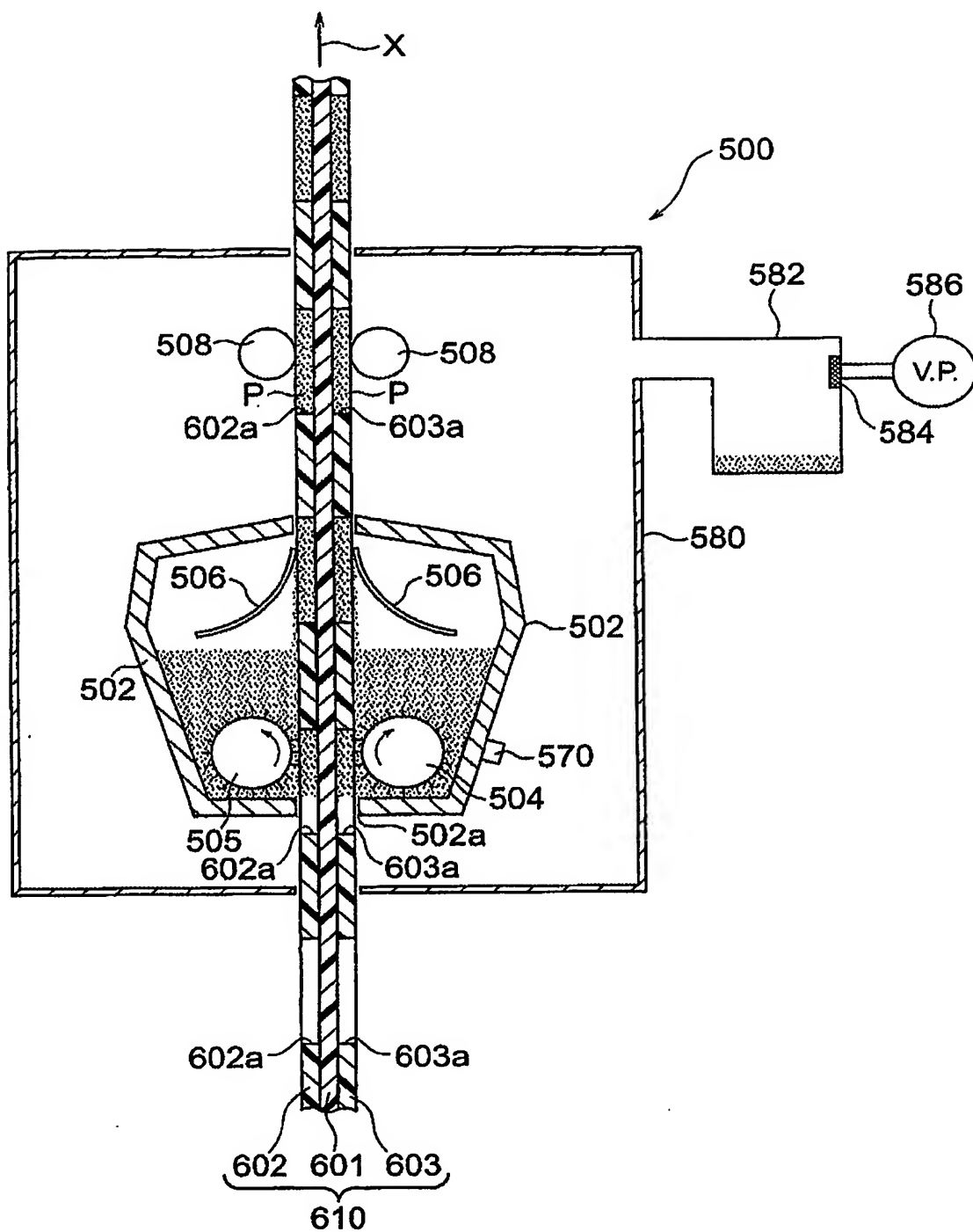
【図 13】



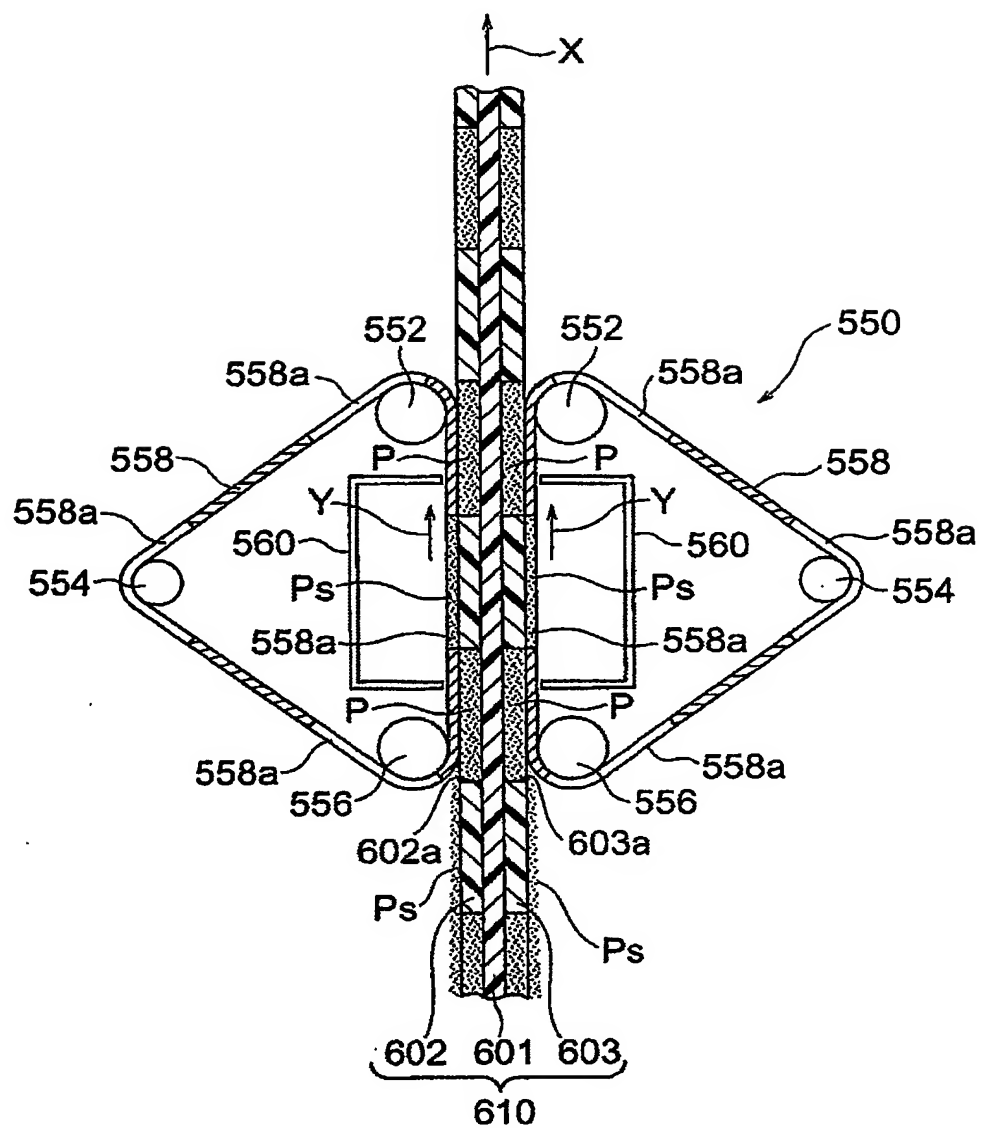
【図 14】



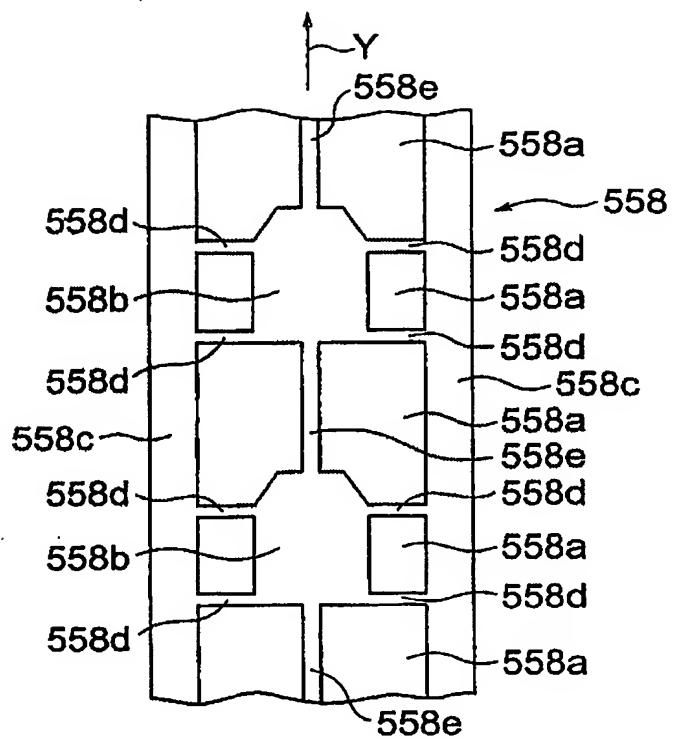
【圖 15】



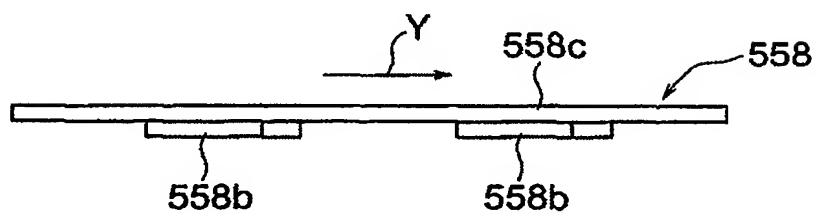
【図 16】



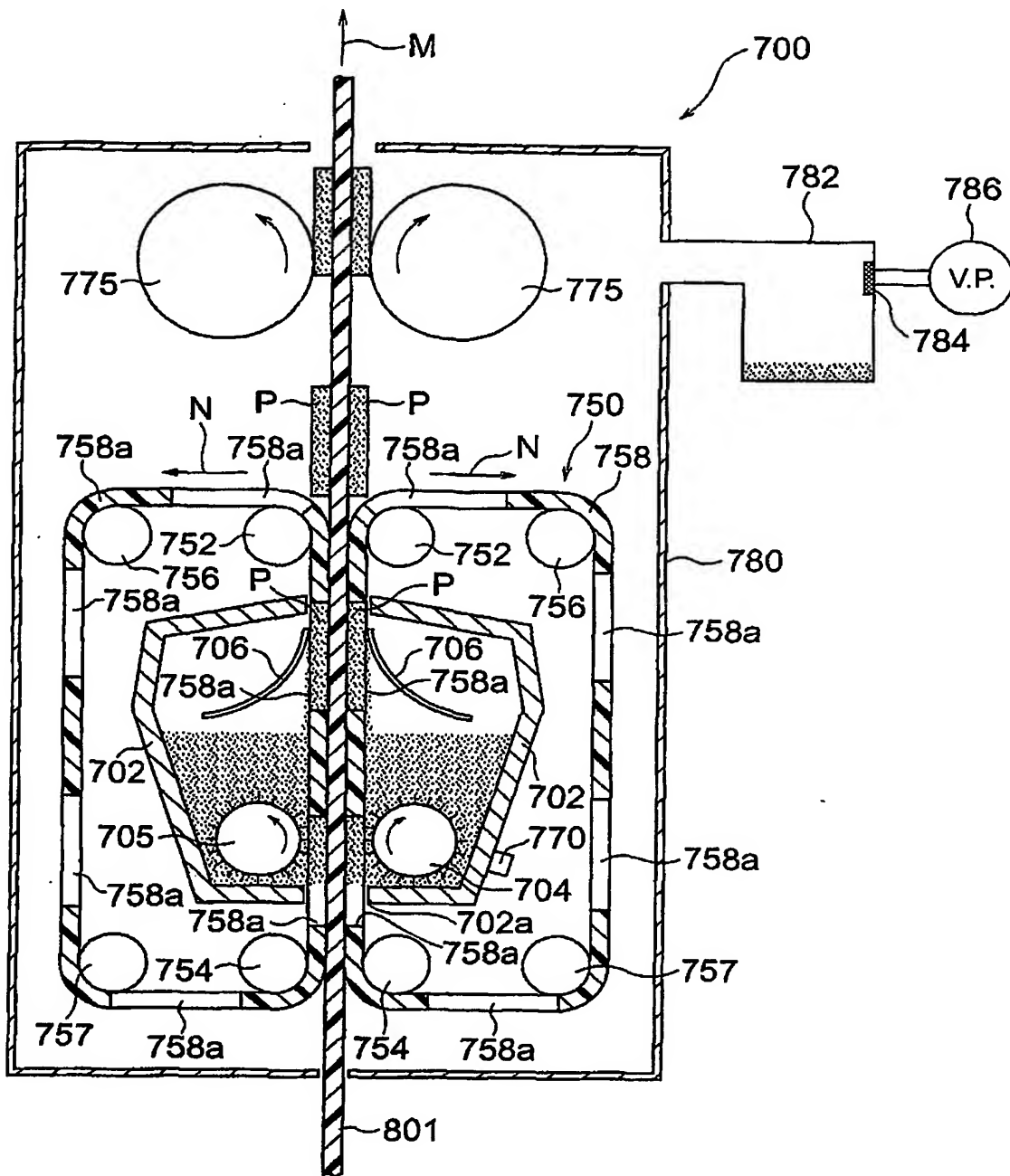
【図 17】



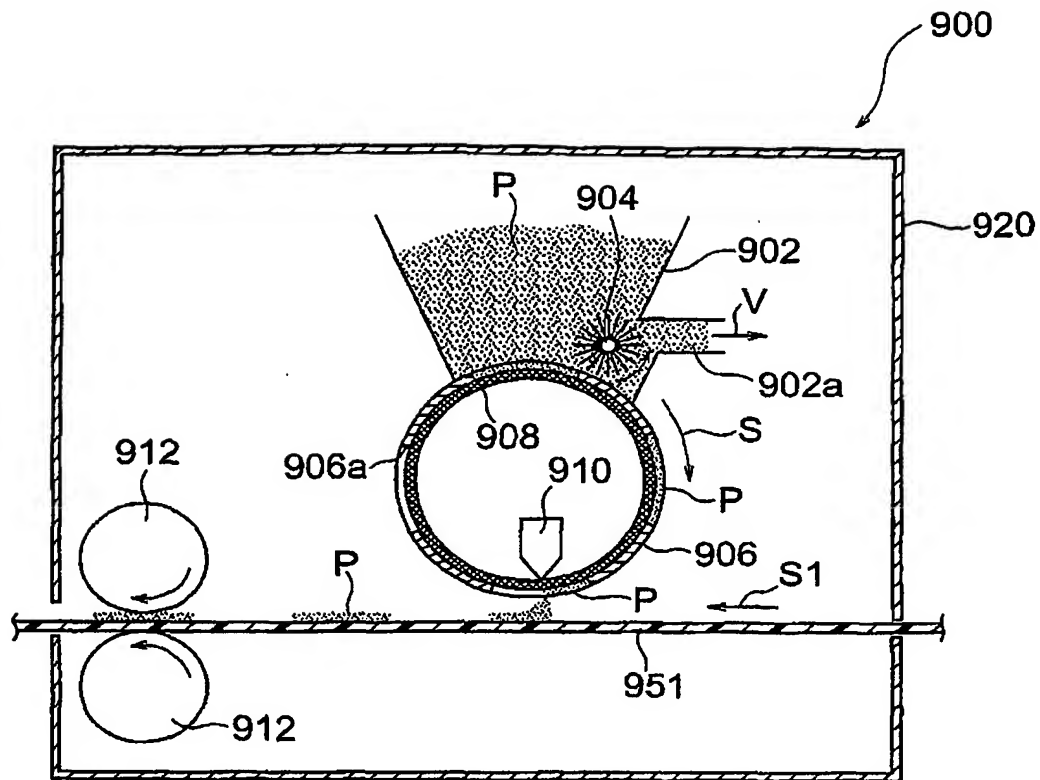
【図 18】



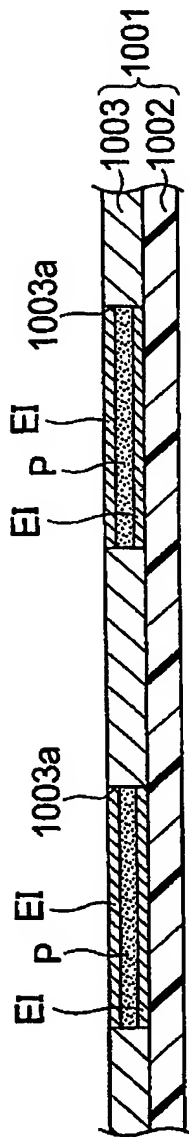
【図 19】



【図 20】



【図 21】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 所望するパターンの電極を高品質のもと、高効率の生産性をもって製造するための電解質膜を提供する。

【解決手段】 電極を付与する前の燃料電池用電解質膜（11）に、前記電解質膜の少なくとも片面に所望する電極形状にくりぬかれた穴（12a、13a）を有するマスキング部材（12、13）を自着又は微粘着剤を介して貼り合わせた。

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 2 9 1 2 0 7
受付番号	5 0 3 0 1 3 2 8 6 3 5
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 5 年 8 月 1 2 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】

平成15年 8月11日

特願 2 0 0 3 - 2 9 1 2 0 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[3 9 1 0 1 9 1 2 0]

1. 変更年月日

1 9 9 1 年 1 月 3 1 日

[変更理由]

新規登録

住 所

アメリカ合衆国、4 4 1 4 5 オハイオ、ウエストレイク、ク

レメンズ ロード 2 8 6 0 1

氏 名

ノードソン コーポレーション

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.